



# ÉTUDE EXPÉRIMENTALE ET MODÉLISATION MÉCANIQUE DE LA CORROSION SOUS CONTRAINTES DES GAINES EN ZIRCALOY-4

Olivier Fandeur

► To cite this version:

Olivier Fandeur. ÉTUDE EXPÉRIMENTALE ET MODÉLISATION MÉCANIQUE DE LA CORROSION SOUS CONTRAINTES DES GAINES EN ZIRCALOY-4. Mécanique des matériaux [physics.class-ph]. ÉCOLE CENTRALE DES ARTS ET MANUFACTURES " ÉCOLE CENTRALE PARIS ", 2001. Français. <NNT : 2001ECAP0734>. <tel-01094621>

**HAL Id: tel-01094621**

**<https://hal-ecp.archives-ouvertes.fr/tel-01094621>**

Submitted on 16 Jan 2015

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.



**ÉCOLE CENTRALE DES ARTS ET MANUFACTURES**  
**« ÉCOLE CENTRALE PARIS »**

## **THÈSE**

pour l'obtention du grade de

**DOCTEUR DE L'ÉCOLE CENTRALE DES ARTS ET MANUFACTURES**  
**« ÉCOLE CENTRALE PARIS »**

Discipline : **Mécanique et Matériaux**

Laboratoires d'accueil : Mécanique des Sols, Structures et Matériaux (ECP)

Laboratoire d'Études et Modélisation (CEA Saclay)

présentée par

**Olivier Fandeur**

## **Étude expérimentale et modélisation mécanique de la corrosion sous contrainte des gaines en Zircaloy-4**

Soutenue publiquement le 14 décembre 2001

devant le jury composé de :

M.	Georges Cailletaud	président,
MM.	Patrick Delobelle	
	Thierry Magnin	rapporteurs,
Mmes	Jacqueline Brochard	
	Marion Parise	examinatrices,
MM.	Clément Lemaignan	examineur,
	Philippe Pilvin	co-directeur de thèse,
	Claude Prioul	directeur de thèse

**2001-38**



## *PRÉAMBULE*

Ce mémoire est l'aboutissement de quatre années de travail effectuées au sein du Service d'Études des Matériaux Irradiés (SEMI) au CEA Saclay et du Laboratoire de Mécanique des Sols, Structures et Matériaux (MSS-Mat) à l'École Centrale Paris.

Je tiens à exprimer ma profonde gratitude envers M. Georges Cailletaud pour avoir accepté la présidence du jury, MM. Patrick Delobelle et Thierry Magnin d'avoir rempli la lourde tâche de rapporter sur mon travail, Mmes Marion Parise et Jacqueline Brochard et M. Clément Lemaignan d'avoir accepté d'être membre de mon jury de thèse. Que tous les membres du jury soient remerciés pour la lecture attentive et approfondie de mon mémoire.

Je tiens à remercier chaleureusement Claude « Chef » Prioul et Philippe « Patron » Pilvin pour les multiples échanges fructueux que nous avons eus au cours de ma thèse, leur soutien constant et également pour m'avoir supporté tout au long de ces quatre années.

La partie expérimentale de mon travail n'aurait pu aboutir sans les contributions importantes du Professeur Ivan Nedbal, qui a observé au MEB, sans compter, durant de longues heures, les nombreux échantillons que je lui avais préparés, de MM. Ludovic Rouillon et Jean-François Lécot, qui ont réalisé, avec enthousiasme, bon nombre des essais de CSC, et M. Jean-Luc Béchade, pour ses analyses aux rayons X. Je leur adresse toute ma gratitude.

Je tiens à remercier mes interlocuteurs des différents centres du CEA (Cadarache, Grenoble et Saclay) et partenaires industriels, que sont EDF et Framatome ANP, pour l'intérêt qu'ils ont porté à mon travail et les nombreux échanges qui en ont découlé.

Je suis reconnaissant envers l'ensemble des équipes des différents laboratoires du CEA et de l'École Centrale Paris qui m'ont accueilli chaleureusement. Et je souhaite remercier, tout particulièrement, Nicolas H., Fabrice B., Jean-François L., Roland S., mes compagnons thésards que sont Serge P., Philippe E., Petr H., Seddik S., Ann-Lenaig H., Virginie C., Nicolas K., pour l'ambiance conviviale qu'ils ont fait régner au cours de ma thèse, notamment lors des moments difficiles, tant au laboratoire qu'en dehors.

Je tiens à m'excuser auprès de ceux ou celles qui n'ont pu être cités et leur adresse toute ma gratitude.

Je dédie ce mémoire à toute ma famille.





<b>INTRODUCTION</b>	<b>11</b>
---------------------	-----------

**PARTIE A**  
**CORROSION SOUS CONTRAINTE DES ALLIAGES DE ZIRCONIUM.**  
**SYNTHÈSE BIBLIOGRAPHIQUE**

**CHAPITRE PREMIER.**

<b>CONTEXTE DE L'ÉTUDE - PROBLÈME INDUSTRIEL</b>	<b>15</b>
--	-----------

<b>1 LE CRAYON COMBUSTIBLE.....</b>	<b>15</b>
<b>2 LE PHÉNOMÈNE D'INTERACTION PASTILLE-GAINE.....</b>	<b>18</b>

**CHAPITRE II.**

<b>LA RUPTURE DES CRAYONS COMBUSTIBLES PAR CORROSION SOUS CONTRAINTE EN RÉACTEUR</b>	<b>23</b>
--	-----------

<b>1 LA DÉCOUVERTE DU PHÉNOMÈNE .....</b>	<b>23</b>
<b>2 LES PREMIÈRES RUPTURES DE GAINE EN RÉACTEUR .....</b>	<b>24</b>
<b>3 ÉTUDE EN RÉACTEUR EXPÉRIMENTAL DE L'ORIGINE DES RUPTURES DE GAINE.....</b>	<b>28</b>
<b>4 MISE EN PLACE DE REMÈDES AUX RUPTURES DE GAINE .....</b>	<b>30</b>
4.1 ÉTUDE DES REMÈDES .....	30
4.2 RUPTURES DE GAINES : UN PROBLÈME RÉSOLU ? .....	32
<b>5 CONCLUSIONS .....</b>	<b>32</b>

**CHAPITRE III.**

<b>ÉTUDE EN LABORATOIRE DE LA CORROSION SOUS CONTRAINTE DES ALLIAGES DE ZIRCONIUM</b>	<b>33</b>
---	-----------

<b>1 DESCRIPTION DU PHÉNOMÈNE.....</b>	<b>33</b>
<b>2 ENVIRONNEMENT CHIMIQUE ET CORROSION SOUS CONTRAINTE.....</b>	<b>34</b>
2.1 CORROSION SOUS CONTRAINTE PAR L'IODE.....	34
2.1.1 Attaque chimique par l'iode .....	34
2.1.2 Existence de l'iode en réacteur.....	38
2.1.3 Processus d'attaque chimique : l'adsorption de l'iode .....	40
2.1.4 Essais en méthanol iodé / iode vapeur .....	40
2.1.5 Conclusions partielles .....	41
2.2 CORROSION SOUS CONTRAINTE PAR D'AUTRES ESPÈCES CHIMIQUES .....	41
2.2.1 Césium.....	41
2.2.2 Cadmium .....	42
2.2.3 Tellure .....	43
2.2.4 Conclusions .....	43
2.3 INFLUENCE DE L'OXYGÈNE .....	44
2.4 CONCLUSIONS SUR L'INFLUENCE DE L'ENVIRONNEMENT .....	46
<b>3 AMORÇAGE DES FISSURES.....</b>	<b>46</b>
<b>4 DÉVELOPPEMENT ET PROPAGATION D'UNE FISSURE DE CORROSION SOUS CONTRAINTE.....</b>	<b>48</b>
<b>5 CONCLUSIONS .....</b>	<b>51</b>

**CHAPITRE IV.****MODÈLES MACROSCOPIQUES DE CORROSION SOUS CONTRAINTE DES ALLIAGES DE ZIRCONIUM 53**

<b>1</b>	<b>QUELQUES GÉNÉRALITÉS.....</b>	<b>53</b>
<b>2</b>	<b>PRÉSENTATION DE QUELQUES MODÈLES .....</b>	<b>54</b>
2.1	MODÈLE DE SCHUSTER-DELETTE (CEA GRENOBLE) [1994].....	54
2.2	MODÈLE DE L'EPRI [MILLER ET AL. 1981 ET 1988].....	55
2.3	MODÈLE DE JENKVIST (ABB ATOM) [1995] .....	58
<b>3</b>	<b>ANALYSE DES MODÈLES ET CONCLUSIONS .....</b>	<b>60</b>

**PARTIE B****COMPOTEMENT MÉCANIQUE DU ZIRCALOY-4 À L'ÉTAT MÉTALLURGIQUE DÉTENDU****CHAPITRE V.****COMPOTEMENT ÉLASTOVISCOPLASTIQUE DU ZIRCALOY-4 DÉTENDU 63**

<b>1</b>	<b>INTRODUCTION .....</b>	<b>63</b>
<b>2</b>	<b>DESCRIPTION DU MATÉRIAU ÉTUDIÉ.....</b>	<b>63</b>
2.1	STRUCTURE CRISTALLINE .....	64
2.2	COMPOSITION CHIMIQUE .....	66
2.3	MICROSTRUCTURE ET TEXTURE CRISTALLOGRAPHIQUE .....	67
2.4	MODES DE DÉFORMATION DES ALLIAGES DE ZIRCONIUM.....	68
<b>3</b>	<b>MODÉLISATION MICROMÉCANIQUE DU COMPORTEMENT DU ZIRCALOY-4.....</b>	<b>72</b>
3.1	PRINCIPE DE L'APPROCHE POLYCRISTALLINE.....	72
3.1.1	Étape de représentation.....	73
3.1.2	Étape de concentration (ou de localisation).....	74
3.1.3	Étape d'homogénéisation .....	76
3.1.4	Notations .....	76
3.2	ÉTAPE D'HOMOGÉNÉISATION.....	76
3.3	CHANGEMENT D'ÉCHELLE : ÉTAPE DE CONCENTRATION .....	77
3.4	COMPORTEMENT INTRAGRANULAIRE DES ALLIAGES DE ZIRCONIUM .....	79
3.5	CONCLUSION .....	82
<b>4</b>	<b>MODÉLISATION MACROSCOPIQUE DU COMPORTEMENT DU ZIRCALOY-4 .....</b>	<b>83</b>
4.1	QUELQUES RAPPELS DE THERMODYNAMIQUE DES MILIEUX CONTINUS .....	83
4.2	DESCRIPTION THERMODYNAMIQUE ANISOTHERME DU MODÈLE DRS SIMPLIFIÉ.....	85
4.3	SYNTHÈSE DU MODÈLE DRS ISOTHERME.....	87
<b>5</b>	<b>MODÉLISATION DU COMPORTEMENT MÉCANIQUE DU ZIRCALOY-4 DÉTENDU.....</b>	<b>87</b>
5.1	PRÉAMBULE.....	87
5.2	DESCRIPTION ET ANALYSE DE LA BASE EXPÉRIMENTALE SUR ZIRCALOY-4 NON IRRADIÉ ET IRRADIÉ DEUX CYCLES.....	89
5.3	IDENTIFICATION DU COMPORTEMENT EN FONCTION DE L'IRRADIATION .....	91
5.4	SYNTHÈSE.....	95
<b>6</b>	<b>CONCLUSION .....</b>	<b>96</b>

<b>ANNEXES DU CHAPITRE V .....</b>	<b>97</b>
ANNEXE A. RAPPELS SUR LA THÉORIE DES PROCESSUS THERMIQUEMENT ACTIVÉS.....	99
ANNEXE B. EXPRESSIONS DES TENSEURS D'ANISOTROPIE DU MODÈLE DRS .....	105
ANNEXE C. ....	107
ANNEXE D. ....	117

### **PARTIE C**

## **CORROSION SOUS CONTRAINTE DU ZIRCALOY-4 DÉTENDU À 350 °C ÉTUDE EXPÉRIMENTALE ET MODÉLISATION**

### **CHAPITRE VI.**

## **ÉTUDE EXPÉRIMENTALE DE LA CORROSION SOUS CONTRAINTE DES ALLIAGES DE ZIRCONIUM 125**

<b>1 INTRODUCTION .....</b>	<b>125</b>
<b>2 ÉTUDE EXPÉRIMENTALE DE LA CORROSION SOUS CONTRAINTE .....</b>	<b>125</b>
2.1 PRÉSENTATION DES ESSAIS DE PRESSURISATION INTERNE .....	125
2.2 DESCRIPTION DES ESSAIS RÉALISABLES - PROPOSITION D'UN NOUVEL ESSAI DE CSC .....	128
2.3 PRÉSENTATION DES RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX.....	130
2.3.1 Sensibilité à la CSC du Zircaloy-4 détendu et son évolution avec l'irradiation.....	130
2.3.2 Essais de charge/décharge de CSC .....	132
2.3.3 Observation des faciès de rupture .....	135
2.4 SYNTHÈSE DES RÉSULTATS .....	137
<b>3 MODÉLISATION ET INTERPRÉTATION DES ESSAIS DE CSC.....</b>	<b>138</b>
3.1 MISE EN ŒUVRE DES CALCULS.....	138
3.1.1 Hypothèses associées à notre modélisation.....	139
3.1.2 Description du maillage - Conditions aux limites .....	139
3.1.3 Modèle non fissuré .....	140
3.2 SIMULATION D'ESSAIS DE CSC SUR MATÉRIAU IRRADIÉ.....	140
3.2.1 Chargements modélisés.....	141
3.2.2 Domaine de validité du facteur d'intensité des contraintes $K_I$ .....	142
3.2.3 Évolution de la zone plastique.....	145
3.3 ANALYSE D'ESSAIS DE CHARGE/DÉCHARGE RÉALISÉS SUR MATÉRIAU NON IRRADIÉ .....	146
3.3.1 Conditions expérimentales modélisées.....	146
3.3.2 Dépouillement des paramètres mécaniques en pointe de fissure .....	147
3.4 CONCLUSIONS SUR LA SIMULATION D'ESSAIS DE CSC.....	149
<b>4 CONCLUSIONS .....</b>	<b>149</b>

### **CHAPITRE VII.**

## **ÉTUDE DE L'AMORÇAGE ET DE LA PROPAGATION DES FISSURES DE CORROSION SOUS CONTRAINTES DANS LES ALLIAGES DE ZIRCONIUM**

151

<b>1 OBSERVATIONS AU MEB DES ESSAIS DE CHARGE/DÉCHARGE .....</b>	<b>151</b>
1.1 PRINCIPE DES ESSAIS INTERROMPUS ET MÉTHODOLOGIE D'OBSERVATION.....	151
1.2 MISE EN ÉVIDENCE D'UNE PHASE DITE D'« INCUBATION » .....	152
1.3 ÉTUDE DE LA PHASE D'« INCUBATION » .....	153
1.3.1 Influence de la sollicitation mécanique et de la durée d'exposition.....	155
1.3.2 Iode et couche de zircone .....	155
1.3.3 Rupture mécanique de la couche d'oxyde - Comparaison calculs / expériences .....	160

1.3.4	Conclusions partielles .....	162
1.4	LOCALISATION DES SITES D'AMORÇAGE DES DÉFAUTS DE CSC.....	163
1.5	SYNTHÈSE.....	165
<b>2</b>	<b>INFLUENCE DU CHARGEMENT MÉCANIQUE SUR LA FISSURATION PAR CSC .....</b>	<b>165</b>
2.1	NOUVEAU PROGRAMME D'ESSAIS DE CSC À CONTRAINTE $\Sigma_H$ ÉLEVÉE .....	166
2.2	ESSAIS DE CSC SUR TUBES PRÉFISSURÉS .....	171
<b>3</b>	<b>CONCLUSIONS .....</b>	<b>176</b>
<b>ANNEXES DU CHAPITRE VI. ....</b>		<b>177</b>
ANNEXE A. DONNÉES EXPÉRIMENTALES DES ESSAIS « CONVENTIONNELS » .....		179
ANNEXE B. DONNÉES EXPÉRIMENTALES DES ESSAIS DE « CHARGE/DÉCHARGE » .....		183
 <b>CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES</b>		 <b>187</b>
 <b>RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES</b>		 <b>193</b>

## ***INTRODUCTION***



## *INTRODUCTION*

La gaine des crayons combustibles des réacteurs à eau sous pression (REP) constitue la première barrière contre la dissémination des produits de fission. Il est donc primordial de garantir son intégrité au cours de son utilisation en réacteur, ainsi qu'en aval du cycle combustible. La part importante de l'électricité d'origine nucléaire dans la production française impose que certains réacteurs fonctionnent en « suivi de réseau ». Le combustible, introduit dans ces réacteurs, peut alors subir des variations de puissance parfois importantes. Suite à un sévère transitoire de puissance du réacteur, la rupture de la gaine peut intervenir par un phénomène de corrosion sous contrainte (CSC), sous l'action conjuguée des sollicitations mécaniques et des produits de fission gazeux engendrés par les pastilles de combustible. Afin d'éviter ces ruptures, les variations de puissance sont alors limitées de sorte que les conditions propices à la fissuration par CSC ne soient pas réunies. En effet, la surveillance de la chimie du fluide caloporteur est très stricte et la rupture d'une dizaine de crayons combustibles sur les 40 000 crayons d'un réacteur suffit à conduire à son arrêt. Les progrès dans la compréhension de ces mécanismes de fissuration par CSC de la gaine des crayons combustibles permettraient alors une meilleure maîtrise de l'intégrité de la gaine lors des sollicitations plus sévères liées aux nouvelles conditions de fonctionnement des REP et ainsi d'accroître les performances de ces réacteurs.

Depuis de nombreuses années, la CSC des alliages de zirconium a donc fait l'objet de recherches importantes, principalement orientées suivant deux axes :

- la détermination des sollicitations appliquées à la gaine en réacteur, dont la modélisation est un problème complexe ;
- l'étude des mécanismes physiques de la CSC, réalisée à partir d'expériences en laboratoire visant à reproduire au mieux les conditions rencontrées en réacteur.

C'est dans ce cadre que s'insère notre travail dont le but est d'étudier le rôle de différents paramètres sur le processus de fissuration par CSC des gaines en Zircaloy-4. Notre démarche comporte trois volets complémentaires :

- la modélisation des champs mécaniques locaux appliqués lors de ces essais en laboratoire ;
- la réalisation d'essais spécifiques visant à séparer l'action des différents paramètres mécaniques ;
- l'observation des mécanismes d'endommagement associés à ces différentes expériences.

Au travers de la synthèse bibliographique présentée à la partie A de ce mémoire, regroupant les chapitres I à IV, nous mettrons en évidence l'influence des différents paramètres, notamment mécaniques, sur le processus de fissuration par CSC.

Le chapitre I décrit les conditions complexes rencontrées en réacteur et, en particulier, le phénomène d'interaction pastille-gaine (IPG) qui est à l'origine des ruptures de gaine lors de



transitoires de puissance sévères. Ce phénomène résulte du comblement, au cours de l'irradiation, du jeu initial existant entre les pastilles et la gaine.

Le chapitre II retrace l'historique de l'identification en réacteur de la CSC comme un des modes principaux de rupture des gaines, identification très controversée encore actuellement.

Au travers du chapitre III, nous aborderons l'étude des mécanismes de la CSC effectuée à partir d'expériences en laboratoire, afin de mettre en évidence le rôle des différents paramètres.

Le chapitre IV présente, sans être exhaustif, quelques-uns des modèles macroscopiques de CSC des alliages de zirconium disponibles dans la littérature.

La nécessité de modéliser les essais de CSC, afin d'obtenir des informations locales non accessibles expérimentalement, nous a conduit à développer des lois de comportement adaptées aux sollicitations complexes de ces essais. La présentation de ces modèles et leur identification sont exposées à la partie B correspondant au chapitre V.

La partie C, comprenant les chapitres VI et VII, est réservée à la présentation et à la discussion des nombreux résultats expérimentaux obtenus en laboratoire au cours de ce travail.

Le chapitre VI décrit notre démarche expérimentale spécifique, couplée à une modélisation numérique de nos expériences, ainsi que les premiers résultats obtenus.

L'observation des mécanismes d'endommagement de la gaine, mis en évidence au cours de notre programme d'essais, est exposée au chapitre VII.

Enfin, nous concluons ce travail en rappelant les points importants acquis et proposerons différentes perspectives.

## ***PARTIE A***

### ***CORROSION SOUS CONTRAINTE DES ALLIAGES DE ZIRCONIUM***

#### ***SYNTHÈSE BIBLIOGRAPHIQUE***



## CHAPITRE PREMIER. CONTEXTE DE L'ÉTUDE - PROBLÈME INDUSTRIEL

Dans ce chapitre, après une présentation rapide de l'assemblage combustible et de ses matériaux constitutifs, nous allons nous intéresser au phénomène d'interaction pastille-gaine (IPG), phénomène lié à la conception du combustible utilisé dans les réacteurs à eau sous pression (REP).

### 1 LE CRAYON COMBUSTIBLE

Le combustible des réacteurs REP se présente sous forme de crayon (fig. I-1). Il est constitué d'un tube de gainage en alliage de zirconium d'une longueur de 4 mètres environ, d'un diamètre extérieur de 9,50 mm et d'une épaisseur de 0,57 mm. Dans ce tube, sont placées les pastilles de combustible (au nombre de 256), d'une hauteur de 13,5 mm pour un diamètre de 8,19 mm. Ces crayons sont regroupés ensuite en assemblage, présenté à la figure I-2.

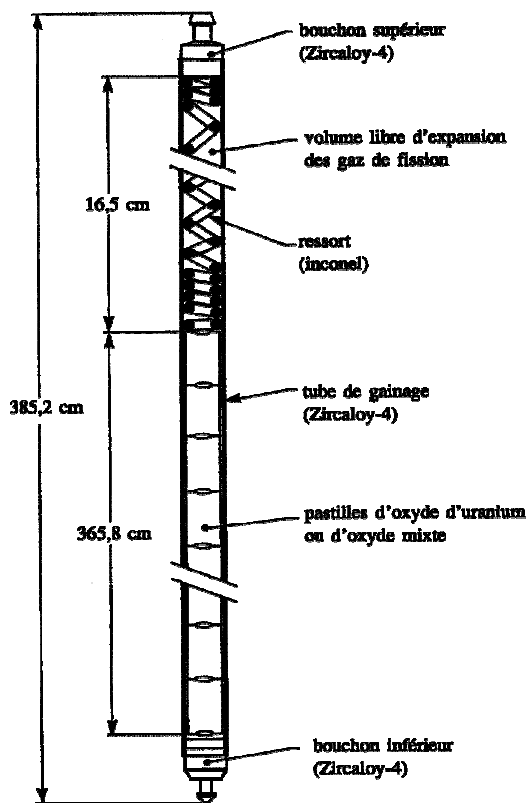


FIG. I-1. Un crayon combustible.

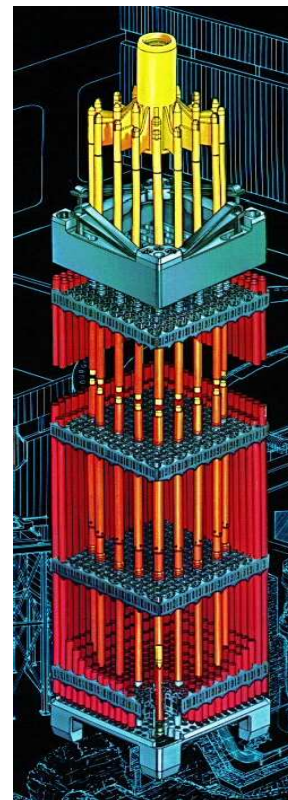


FIG. I-2. Un assemblage REP.

Un assemblage combustible (de conception FRAMATOME) est constitué de :

- 264 crayons combustibles,
- 24 tubes-guides pour les barres de contrôle,
- 1 tube d'instrumentation.

À titre d'exemple, un cœur de réacteur EDF d'une puissance de 900 MW électriques comprend 157 assemblages, soit 41 448 crayons, moins les crayons défectueux qui ont été extraits du cœur.

*Les pastilles de combustible [Bailly et al. 1996]*

Ces pastilles sont obtenues par métallurgie des poudres (frittage), à partir d'une poudre d'oxyde d'uranium ( $\text{UO}_2$ ), enrichie faiblement en uranium  $^{235}\text{U}$  (teneur inférieure à 5 %), ou d'un oxyde mixte uranium-plutonium (MOX), afin de recycler le plutonium issu du retraitement des crayons combustibles. La pastille présente donc une porosité en fin de fabrication, due à la méthode utilisée. Au début de sa vie en réacteur, la pastille va continuer à se densifier sous l'effet de l'irradiation.

Ces pastilles ont des caractéristiques proches d'une céramique fragile. Cette fragilité est mise en évidence par la fragmentation des pastilles, illustrée à la figure I-3. Celle-ci s'explique par la présence d'un fort gradient thermique radial dans la pastille (fig. I-4), dû à une mauvaise conductivité calorifique de l'oxyde. Cette fragmentation intervient dès la première montée en puissance subie par le combustible et il est donc généralement admis que la pastille est fissurée tout au long de son historique d'irradiation.

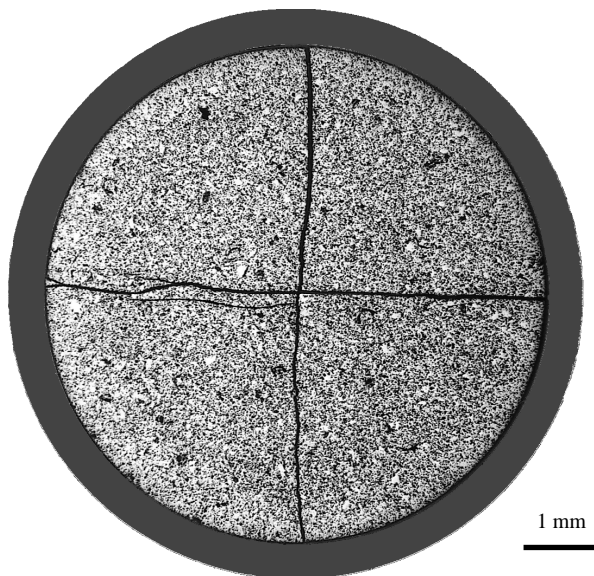


FIG. I-3. Fragmentation d'une pastille.

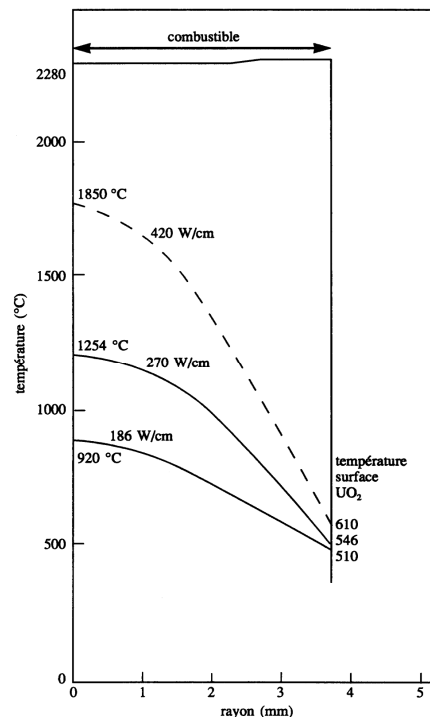


FIG. I-4. Gradient thermique radial [Bailly et al. 1996].

Les pastilles sont le siège des réactions de fission. Les produits de fission engendrés sont sous forme soit solide, soit gazeuse. Ils vont contribuer au gonflement de la pastille ; le gonflement d'origine gazeuse est un phénomène activé thermiquement (à puissance linéique élevée), ce qui n'est pas le cas du gonflement solide.

*Le gainage des crayons combustibles [Bailly et al. 1996]*

Dans le système de sûreté des réacteurs, la gaine forme la première barrière de confinement des matières radioactives (la cuve du réacteur correspondant à la deuxième et le bâtiment du réacteur à la troisième). L'intégrité de la gaine doit être garantie dans les régimes de fonctionnement normal de classe 1 (fonctionnement à puissance constante du réacteur, suivi de réseau et télé réglage) et incidentel de classe 2 (transitoires de puissance incidentels pouvant survenir plusieurs fois au cours de la vie d'un réacteur).

Le choix des alliages de zirconium comme matériau de gainage est motivé par les raisons suivantes :

- leur très bonne transparence aux neutrons thermiques,
- un bon comportement mécanique dans le domaine de température vu en réacteur,
- une bonne résistance à la corrosion par le fluide caloporteur.

Les tableaux I-1 a et I-1 b présentent la composition chimique de ces alliages, selon la norme ASTM B 350.90, dont la concentration en éléments d'alliage et en impuretés est rigoureusement contrôlée pour des raisons neutroniques.

TABLEAU I-1 a. Éléments d'addition des alliages de zirconium pour le gainage des crayons combustibles.

<i>Nom usuel de l'alliage</i>	<i>Zircaloy-2</i>	<i>Zircaloy-4</i>
<i>Référence ASTM</i>	R-60802	R-60804
<i>Éléments d'alliage (% massique)</i>		
Étain	1,2 - 1,7	1,2 - 1,7
Fer	0,07 - 0,2	0,18 - 0,24
Chrome	0,05 - 0,15	0,07 - 0,13
Nickel	0,03 - 0,08	//
Oxygène	À spécifier à la commande En général, 1000 - 1400 ppm	
Zirconium	Complément à 100 %	

TABLEAU I-1 b. Impuretés des alliages de zirconium pour le gainage des crayons combustibles.

<i>Nom habituel de l'alliage</i>	<i>Zircaloy-2</i>	<i>Zircaloy-4</i>
<i>Référence ASTM</i>	R-60802	R-60804
<i>Impuretés (Valeur maximale en ppm)</i>		
Aluminium	75	75
Bore	0,5	0,5
Cadmium	0,5	0,5
Carbone	270	270
Cobalt	20	20
Cuivre	50	50
Hafnium	100	100
Hydrogène	25	25
Magnésium	20	20
Manganèse	50	50
Molybdène	50	50
Nickel	//	70
Azote	65	65
Silicium	120	120
Titane	50	50
Uranium	3,5	3,5
Tungstène	100	100

Les alliages de zirconium ont une structure cristalline hexagonale pseudocompacte jusqu'à 860 °C, c'est-à-dire dans la gamme de températures de la gaine correspondant au domaine de fonctionnement du réacteur (300 à 420 °C environ). Du fait de l'anisotropie de la maille cristalline et du procédé de laminage utilisé pour fabriquer les gaines, le tube de gainage présente une anisotropie corrélée à sa texture (l'axe  $\langle c \rangle$  de la maille hexagonale des cristaux est préférentiellement orienté perpendiculairement à la direction de laminage). Cette anisotropie est à prendre en compte dans certaines propriétés mécaniques du matériau.

Les alliages d'une même famille peuvent se présenter sous plusieurs états métallurgiques, en fonction du traitement thermique final de la fabrication :

- l'état « détendu », restaurant partiellement l'écrouissage du matériau (recuit de cinq heures à 475 °C environ), dans lequel les grains sont très allongés dans la direction axiale de laminage ;
- l'état « recristallisé » (recuit de deux heures à 580 °C), dans lequel les grains sont équiaxes et leur taille dépend de la durée et de la température de recuit.

Dans les réacteurs REP français, l'alliage majoritairement retenu est le Zircaloy-4 à l'état détendu. Mais d'autres alliages sont également à l'étude.

Malgré leur bonne résistance à la corrosion, les alliages de zirconium réagissent avec l'eau du circuit primaire (sous une pression de 155 bars et à une température comprise entre 280 et 330 °C). Le zirconium s'oxyde suivant la réaction :  $\text{Zr} + 2 \text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{ZrO}_2 + 2 \text{H}_2$ . Le tube se recouvre donc d'une couche externe de zircone, d'épaisseur croissante au cours de la vie du crayon en réacteur. Cette couche perturbe la thermique du crayon (la zircone est une céramique isolante) et diminue la résistance mécanique de la gaine (en diminuant son épaisseur). C'est un des facteurs limitant la durée de vie d'un crayon en réacteur.

Une partie de l'hydrogène libéré par l'oxydation du zirconium diffuse dans les parties froides de la gaine et se combine avec le zirconium sous forme de plaquettes d'hydrures. À froid, ces hydrures ont un comportement essentiellement fragile et peuvent conduire à la rupture de la gaine (notamment lors de la manutention d'un assemblage) : c'est la rupture différée par hydrogène. Dans les conditions de fonctionnement en réacteur, la ductilité de ces hydrures augmente, mais elle modifie également les propriétés mécaniques de l'alliage de zirconium (résilience et ductilité).

## 2 LE PHÉNOMÈNE D'INTERACTION PASTILLE-GAINE

Il existe un jeu diamétral de fabrication entre les pastilles et la gaine, nécessaire au montage du crayon combustible. Ce jeu est initialement de 170 µm. Il est rempli avec de l'hélium (à une pression de 25 bars environ à la température ambiante). L'hélium de remplissage a pour but d'améliorer le coefficient de transfert thermique dans le jeu, qui évolue au cours du temps (les produits de fission gazeux ayant une mauvaise conductibilité thermique).

La pastille se densifie, puis gonfle sous l'effet de l'irradiation (à cause des produits de fission). La gaine est, quant à elle, soumise en réacteur, d'une part, à la pression régnant à l'intérieur du crayon combustible, comprise, en début d'irradiation, entre 35 bars à froid et 70 bars à chaud (pression pouvant être beaucoup plus importante en fin de vie) et, d'autre part, à la pression externe de 155 bars du fluide caloporteur. Le fluage de la gaine, accéléré par l'irradiation (fluage dit d'irradiation, s'ajoutant au fluage thermique observé lors d'expériences hors réacteur) va donc entraîner une diminution du diamètre de la gaine. Du fait de phénomènes antagonistes, la pastille et la gaine vont entrer en contact : c'est l'*interaction pastille-gaine* (IPG). Ce phénomène intervient après environ un cycle d'irradiation en réacteur<sup>1</sup> (fin du premier ou début du deuxième cycle de fonctionnement).

---

<sup>1</sup> Un cycle d'irradiation en réacteur de puissance dure environ 11 mois. L'épuisement du combustible sur un cycle est approximativement de 10 GWj/tU (fonction de l'historique de puissance vu par le crayon combustible).

Dans le but d'illustrer ce phénomène, un calcul 2D axisymétrique a été effectué à l'aide du code de calcul TOUTATIS, code par éléments finis développé au CEA Saclay pour étudier le comportement du crayon combustible dans les régimes de fonctionnement de classes 1 et 2.

Le maillage axisymétrique d'une demi-pastille et de la portion de gaine en vis-à-vis est présenté à la figure I-5. La figure I-6 reproduit l'historique de puissance vu par le crayon (simulation de deux cycles de fonctionnement en base dans un réacteur EDF).

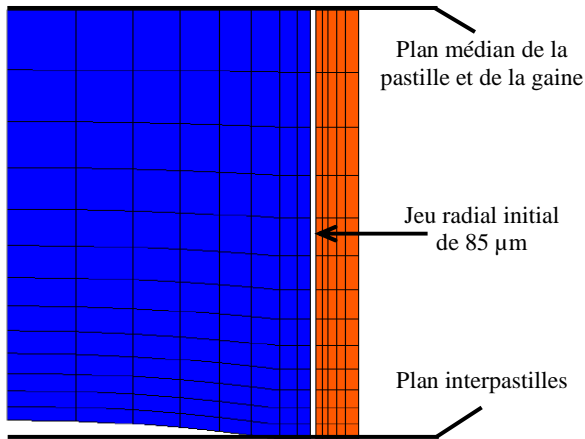


FIG. I-5. Maillage axisymétrique utilisé pour la modélisation.

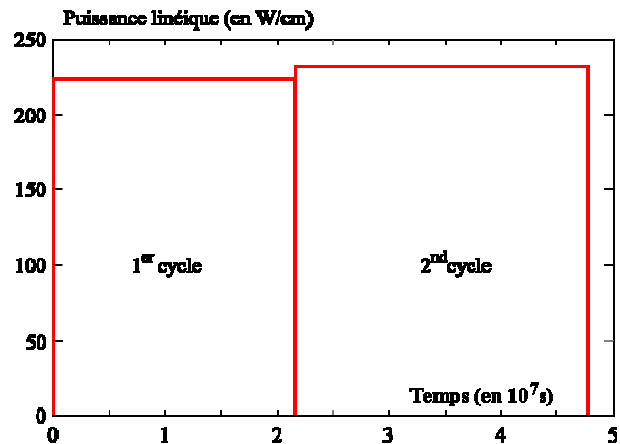


FIG. I-6. Historique simulé, vu par le crayon en réacteur industriel.

Les déplacements radiaux d'un point de la surface extérieure de la pastille et du point de la gaine en vis-à-vis sont représentés sur la figure I-7 et montrent bien le phénomène d'interaction pastille-gaine. Une fois le contact établi, la pastille tend alors à imposer ses déplacements à la gaine qui la contraint en retour. Du fait de l'existence d'un gradient thermique dans la pastille, cette dernière prend une forme dite en « diabolo » (fig. I-8a), ce qui crée alors des plis sur la gaine au niveau des plans interpastilles (celle-ci prend alors une forme de « bambou »). Cet effet « diabolo » est accentué par la fragmentation longitudinale du combustible (fig. I-8b).

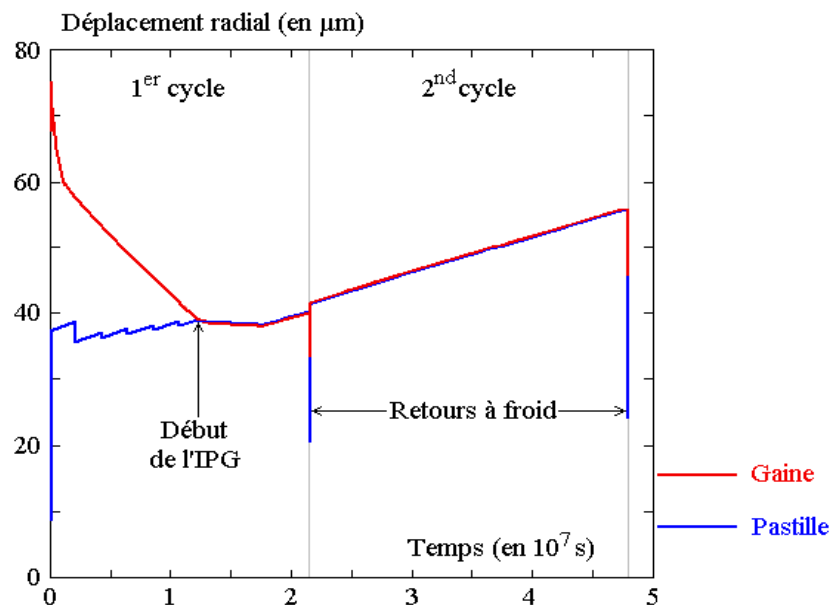


FIG. I-7. Déplacement radial d'un point du combustible et de son vis-à-vis sur la gaine.



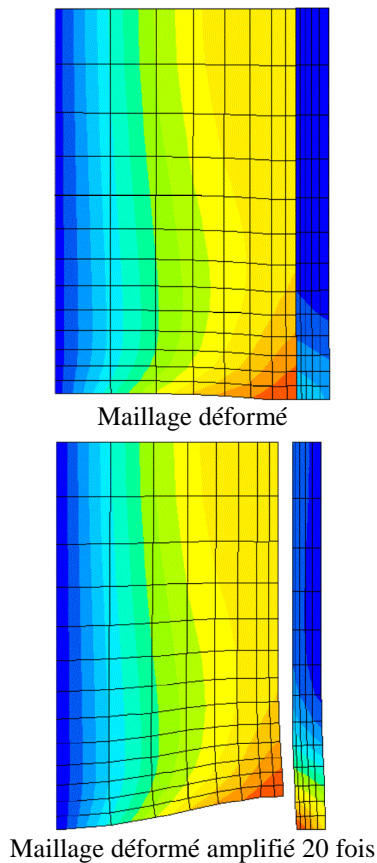


FIG. I-8A. Mise en diablo.

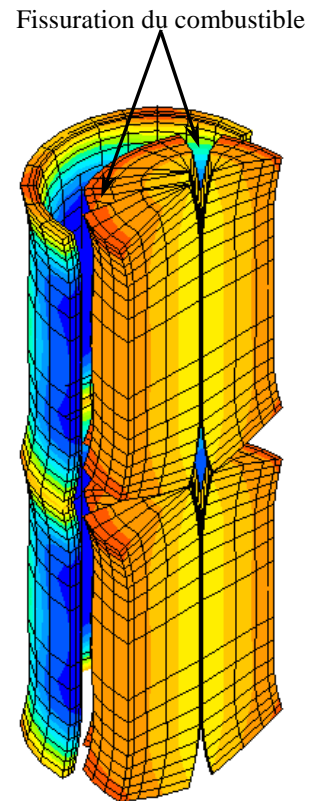


FIG. I-8B. Mise en diablo et fragmentation du combustible.

La mise en diablo de la pastille crée au niveau des plans interpastilles des concentrations mécaniques locales dans la gaine. La présence de fissures dans le combustible et du frottement à l'interface pastille-gaine accentue cet effet de localisation des champs mécaniques, comme le montrent les figures I-9a et I-9b.

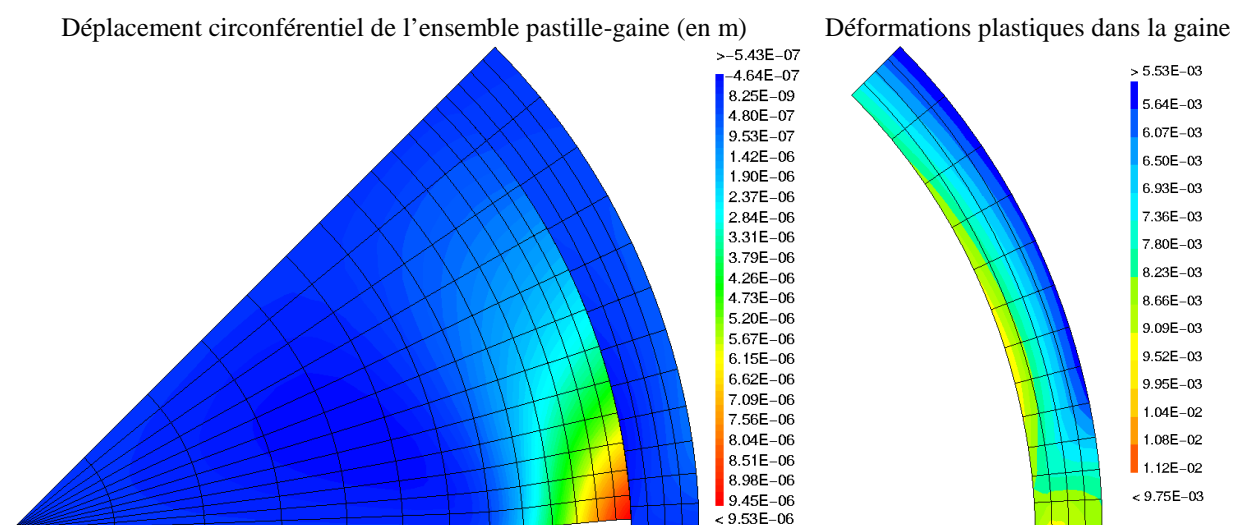


FIG. I-9A. Champs de déplacement et de déformation plastique (glissement parfait entre la pastille et la gaine).

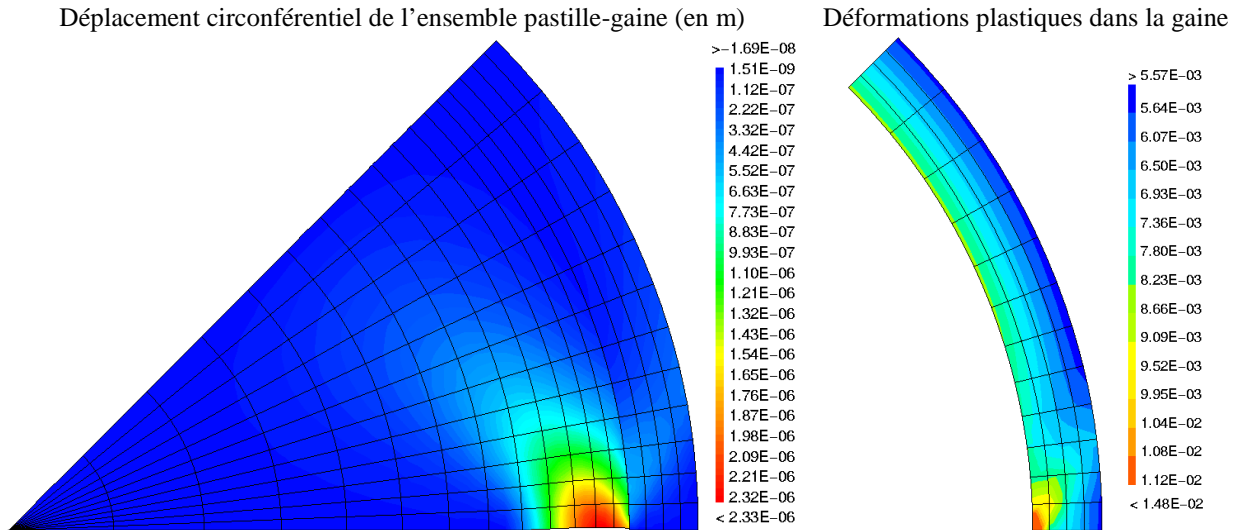


FIG. I-9B. *Champs de déplacement et de déformation plastique*  
(le coefficient de frottement entre la pastille et la gaine vaut 0,7).

Une fois l'interaction pastille-gaine établie, lors de toute variation de puissance, la déformation de la gaine est imposée par la pastille de combustible. L'augmentation de température liée à la montée en puissance entraîne une augmentation du volume de la pastille, par dilatation thermique, qui « pousse » alors sur la gaine. Cette poussée de l'oxyde d'uranium provoque, dans les zones de concentrations précédemment citées, des variations importantes des champs mécaniques. Les contraintes, subies par la gaine, se relaxent ensuite par fluage, lorsque la puissance est maintenue.

Reprenons l'exemple précédent. Le crayon, irradié deux cycles en réacteur de puissance, va maintenant subir un transitoire de puissance en réacteur expérimental, décrit à la figure I-10, dans le cadre d'une irradiation analytique appelée « rampe ».

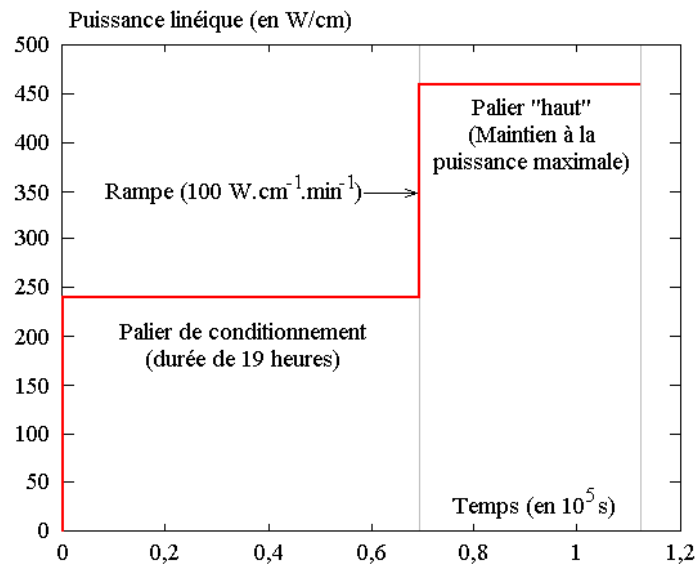


FIG. I-10. *Transitoire de puissance en réacteur expérimental.*

La poussée de la pastille sur la gaine est illustrée sur la figure I-11. Les variations du champ de contraintes dans la gaine suite à la montée en puissance sont montrées à la figure I-12.

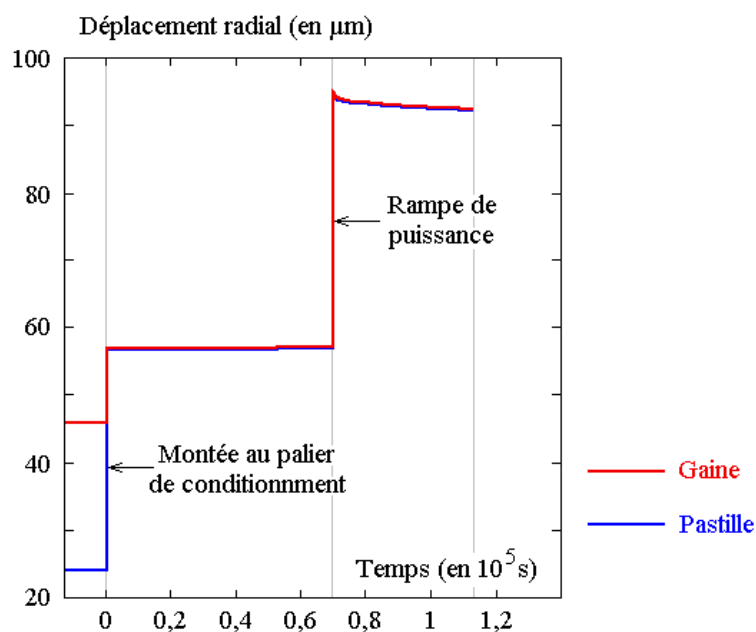


FIG. I-11. Poussée de la pastille sur la gaine au cours d'un transitoire de puissance.

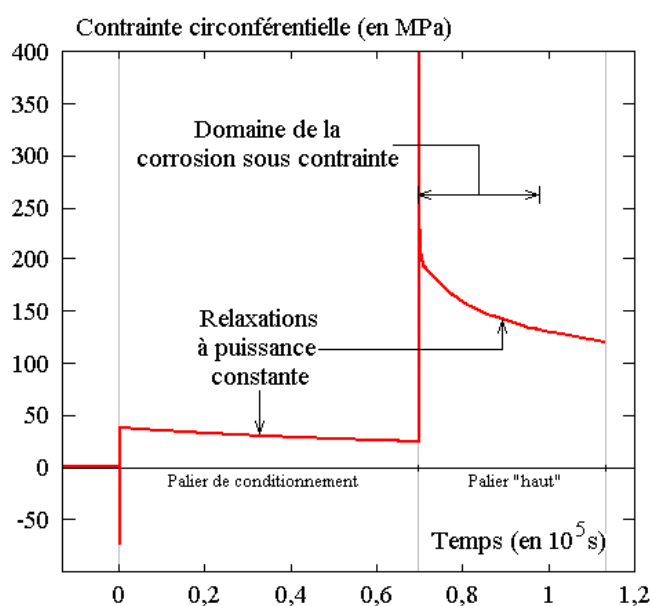


FIG. I-12. Évolution de la contrainte circonférentielle locale sur la face interne de la gaine, au niveau du plan interpastilles, au cours du transitoire de puissance.

Lors de transitoires de puissance, l'interaction pastille-gaine augmente les grandeurs mécaniques (contrainte et déformation), plus particulièrement en certains points de la gaine. Ces zones de la gaine sont situées au niveau des plans interpastilles et en face des fissures du combustible.

Les transitoires de puissance entraînent des relâchements de produits de fission gazeux dans le jeu entre les pastilles et la gaine, pouvant être importants suivant la puissance atteinte. Ces gaz de fission viennent des zones chaudes du combustible et arrivent, par les fissures du combustible, sur la gaine au niveau des zones très sollicitées de la gaine. La présence parmi ces gaz d'agents agressifs, tels que l'iode, provoque la corrosion sous contrainte pouvant conduire jusqu'à la rupture de la gaine, qui fait l'objet de ce mémoire.

## CHAPITRE II.

### LA RUPTURE DES CRAYONS COMBUSTIBLES PAR CORROSION SOUS CONTRAINTE EN RÉACTEUR

La reconnaissance de la corrosion sous contrainte comme mode de rupture de la gaine en réacteurs de puissance et expérimentaux a été, durant les années 1970, très controversée. Ce chapitre dresse un historique de l'étude des ruptures par interaction pastille-gaine des crayons combustibles, étude menée en réacteur expérimental. Cet état des lieux ne nous paraît pas superflu, car il n'est pas sans conséquence sur la connaissance profonde et la modélisation actuelle du phénomène de corrosion sous contrainte.

#### 1 LA DÉCOUVERTE DU PHÉNOMÈNE

Les premières ruptures attribuées à la Corrosion Sous Contrainte [Lyons 1963/1964] sont intervenues en 1963 et 1964, dans le cadre d'un programme Euratom-USAEC, dans le réacteur expérimental GETR<sup>1</sup> à Vallecitos (États-Unis). L'objectif de ce programme était de déterminer le taux de combustion maximal n'entraînant pas la rupture de la gaine. La projection de combustible fondu sur la gaine était le mode pressenti de rupture de cette dernière. On souhaitait atteindre à l'époque un épuisement de 10 GWj/tU !

Cette valeur correspond, aujourd'hui, au taux de combustion d'un crayon combustible après son premier cycle d'irradiation en réacteur de puissance. Les ruptures constatées faisaient suite à des transitoires de puissance lors du redémarrage du réacteur. Les fissures associées à ces ruptures ne pouvaient être créées que durant la dernière montée en puissance, car les crayons rompus ne présentaient aucun défaut lors de leur examen précédant cette variation de puissance. La très faible augmentation de diamètre au niveau de la rupture suggérait une importante perte de ductilité de la gaine en Zircaloy-2, mais les mesures de dureté effectuées étaient incohérentes avec cette hypothèse. De même, l'analyse microstructurale ne montrait aucune présence d'hydrures, qui aurait aussi pu expliquer cette diminution de ductilité. L'observation d'un crayon défectueux, réalisée rapidement après la rupture, a mis en évidence des pics de concentration de produits de fission, tels l'iode et le tellure, au niveau des interpastilles, concentration d'autant plus élevée que la puissance locale était importante. La région où les fissures apparaissaient correspondait également au domaine où la puissance était localement la plus élevée (voir fig. II-1). L'hypothèse d'un rapport entre la concentration des produits de fission et les ruptures constatées fut alors émise.

Rosenbaum *et al.* [1966 a et 1966 b] ont alors étudié, de manière analytique, l'interaction du Zircaloy-2 avec l'iode. La fissuration de l'alliage de zirconium apparaît si une contrainte et un environnement agressif sont simultanément présents ; cette fissuration pouvant être désignée, selon Rosenbaum [1966 b], par le terme de « corrosion sous contrainte ». Le choix d'étudier l'iode comme agent corrosif fut motivé par la connaissance de la formation d'iodures de zirconium (volatils), formation utilisée lors du processus de purification du zirconium développé par Van Arkel en 1925. Les faciès de rupture, obtenus sur du Zircaloy-2 non irradié, présentaient un aspect de type mixte, fragile et ductile, très proches de ceux observés dans le réacteur GETR.

---

<sup>1</sup> GETR (General Electric Testing Reactor) : réacteur expérimental de type REB (Réacteur à Eau Bouillante) d'une puissance de 5MW électriques.

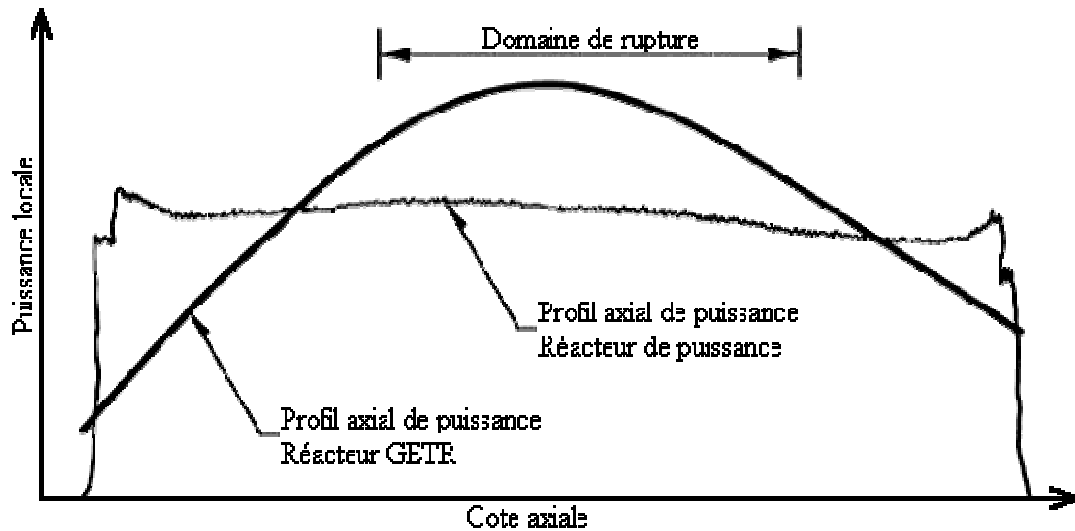


FIG. II-1. Corrélation puissance - domaine de rupture.

## 2 LES PREMIÈRES RUPTURES DE GAINÉ EN RÉACTEUR

Les premières ruptures de gaine en réacteur industriel sont intervenues en Amérique du Nord au début des années 1970, d'une part, dans les réacteurs de type REB et, d'autre part, dans les réacteurs de la filière CANDU<sup>2</sup>. Les crayons combustibles présents en réacteur à cette époque commençaient à atteindre des taux de combustion pour lesquels l'interaction pastille-gaine était susceptible d'apparaître.

Ces ruptures intervenaient toujours suite à des transitoires de puissance. Dans le cas de la filière REB, les variations de puissance globales imposées au réacteur peuvent impliquer localement des montées en puissance très importantes et rapides. Dans les réacteurs CANDU, les ruptures faisaient généralement suite au rechargement du combustible, rechargement s'effectuant alors que le réacteur est en fonctionnement. L'introduction ou le retrait d'un assemblage combustible est équivalent à un transitoire de puissance pour les assemblages voisins. Les premières ruptures de gaine dans le réacteur REP de Maine Yankee (États-Unis) en 1974, suite à un transitoire de puissance très sévère, ont montré l'aspect générique de ces ruptures, liées à la conception du crayon combustible (combustible sous forme de pastilles d'oxyde d'uranium et alliages de zirconium pour la gaine). Ces ruptures ont pris des proportions « épidémiques » [Cox 1990 b], provoquant des pertes financières importantes pour les exploitants de ces réacteurs et limitant la manœuvrabilité des centrales nucléaires<sup>3</sup>. C'est pour cette raison que d'importants programmes expérimentaux ont été mis en œuvre, afin de déterminer le ou les mécanismes de ces ruptures et les remèdes possibles.

Les défauts observés en réacteur possèdent les caractéristiques suivantes.

- Le défaut s'est amorcé sur la face interne de la gaine, ce qui est visible lorsque le défaut n'est pas traversant, comme le montre la figure II-2a.
- Les ruptures se produisent au niveau des plans interpastilles et, en général, en vis-à-vis de fissures de la pastille de combustible (voir fig. II-2b).

<sup>2</sup> CANDU (CANAdian Deuterium Uranium) : filière de conception canadienne, dont le fluide caloporteur est de l'eau lourde sous pression. Quelques particularités de cette filière sont la disposition horizontale des assemblages combustibles et le rechargement en continu de ces assemblages au cours du fonctionnement du réacteur.

<sup>3</sup> À titre indicatif : en 1977, aux États-Unis, afin de limiter les ruptures par interaction pastille-gaine, la disponibilité des réacteurs REP a été réduite en moyenne de 1 % et de 3 % pour les réacteurs de la filière REB (voire jusqu'à 6 % pour quelques-uns de ces réacteurs).

- La gaine est peu déformée circonférentiellement. Il n'y a pas de réduction notable de l'épaisseur de la gaine au niveau de la rupture, ce qui est incompatible avec une rupture complète de la gaine par déchirure ductile (cf. fig. II-3).
- Les fissures sont axiales, s'ouvrant sous l'action de la contrainte circonférentielle, comme le montre la figure II-4.
- Les défauts pouvant être observés montrent des faciès d'aspect fragile, majoritairement transgranulaires, précédés d'une zone de développement intergranulaire (voir fig. II-5, II-6 et II-7), zone qui n'est pas toujours observée.

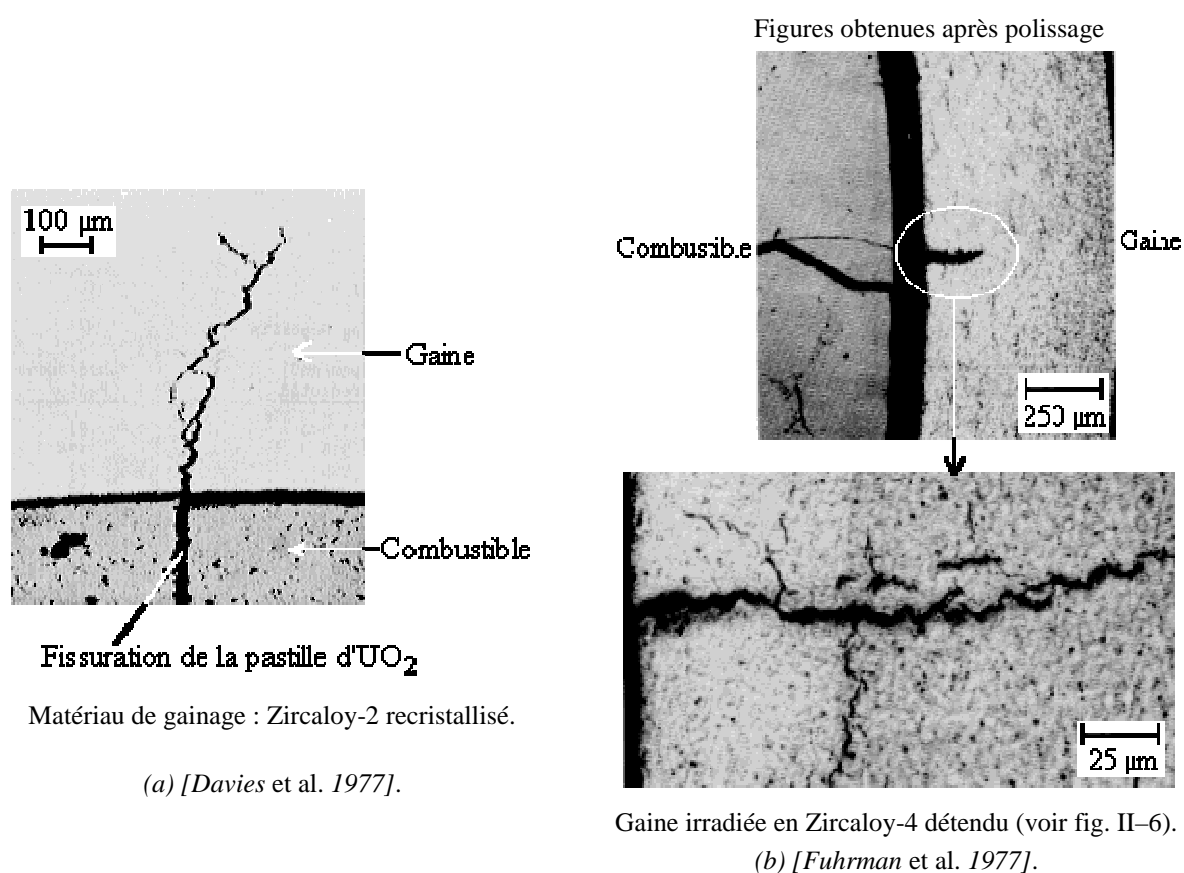


FIG. II-2. Exemples de défauts observés en réacteur (a) REB, (b) REP.

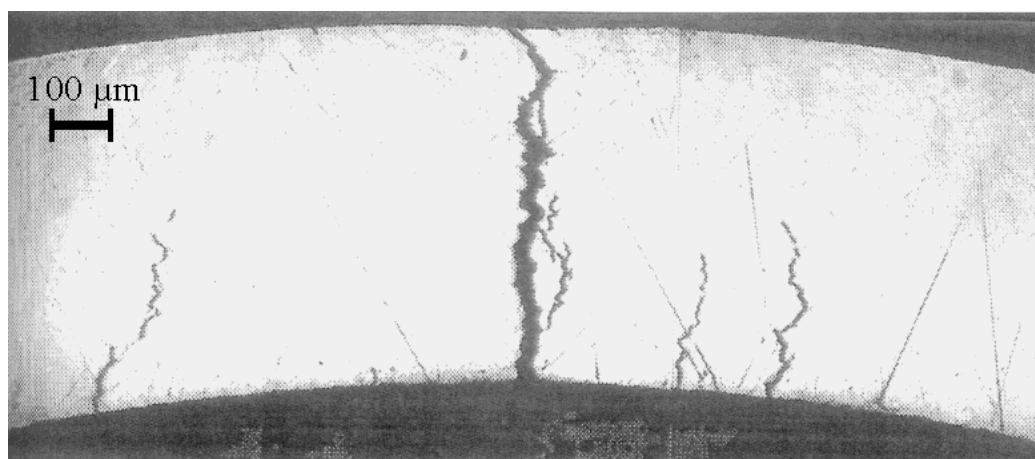
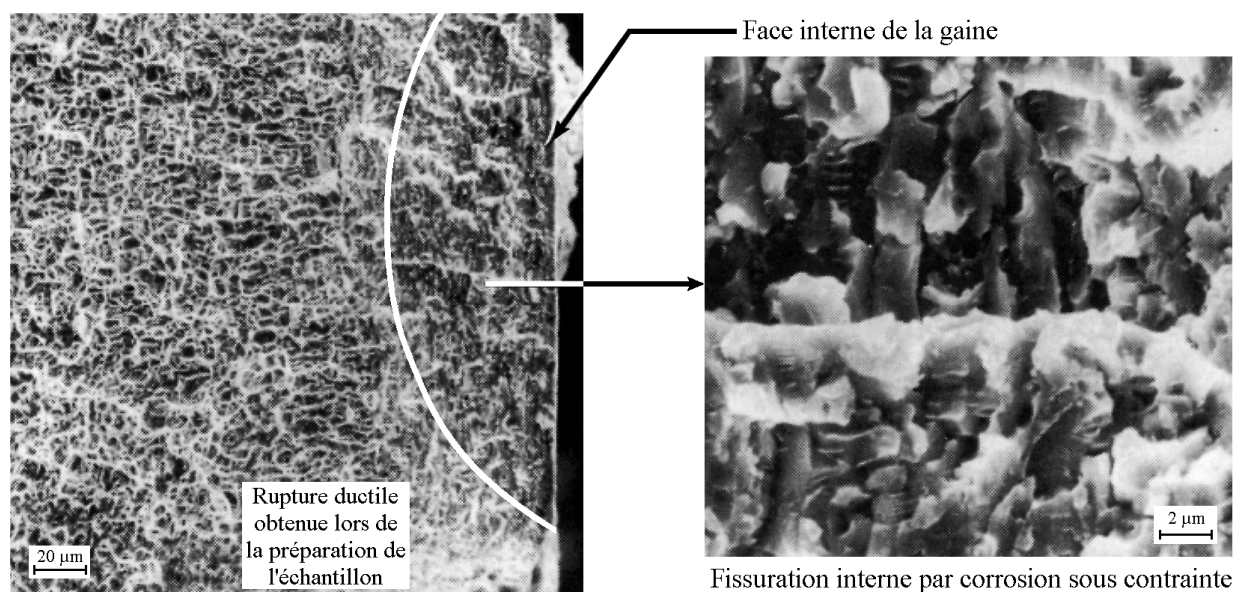
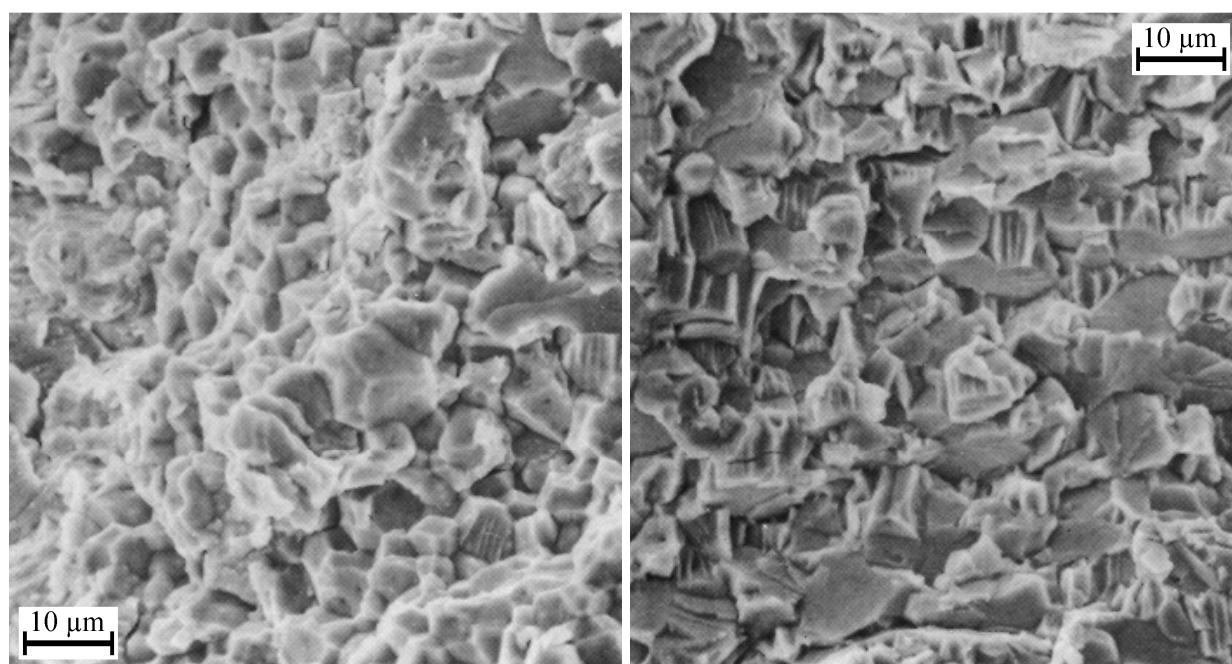


FIG. II-3. Exemple de crayon rompu montrant la faible réduction d'épaisseur de la gaine au niveau de la fissure débouchante [Boyer et al. 1994].



Tube de gainage en Zircaloy-2 (recuit de détensionnement à 500 °C), irradié dans le réacteur REB de Humboldt Bay (États-Unis) jusqu'à un taux de combustion de 11,0 GWj/tU, puis soumis à un transitoire de puissance en réacteur expérimental.

FIG. II-4. Fissure de corrosion sous contrainte issue d'un crayon non rompu [Davies et al. 1977].



(a) Développement intergranulaire.

(b) Phase transgranulaire.

Gaine en Zircaloy-2 recristallisé (recuit à 650 °C pendant 8 heures), irradié dans le réacteur REB de Humboldt Bay jusqu'à un taux de combustion de 8,7 GWj/tU, puis soumis à un transitoire de puissance dans le réacteur expérimental GETR.

FIG. II-5. Faciès d'un défaut observé dans un crayon rompu [Davies et al. 1977].

Définition du gainage :

- diamètre extérieur de 11,18 mm,
- épaisseur de 0,986 mm,
- Zircaloy-4 détendu,
- taux de combustion de 13 GWj/tU.

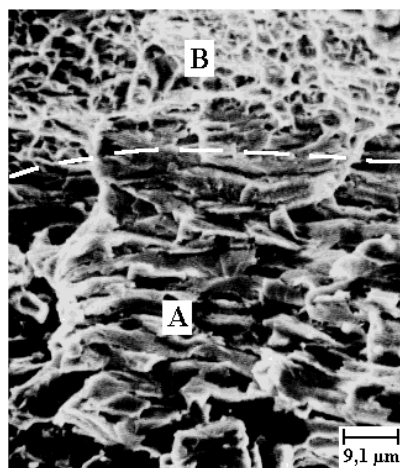
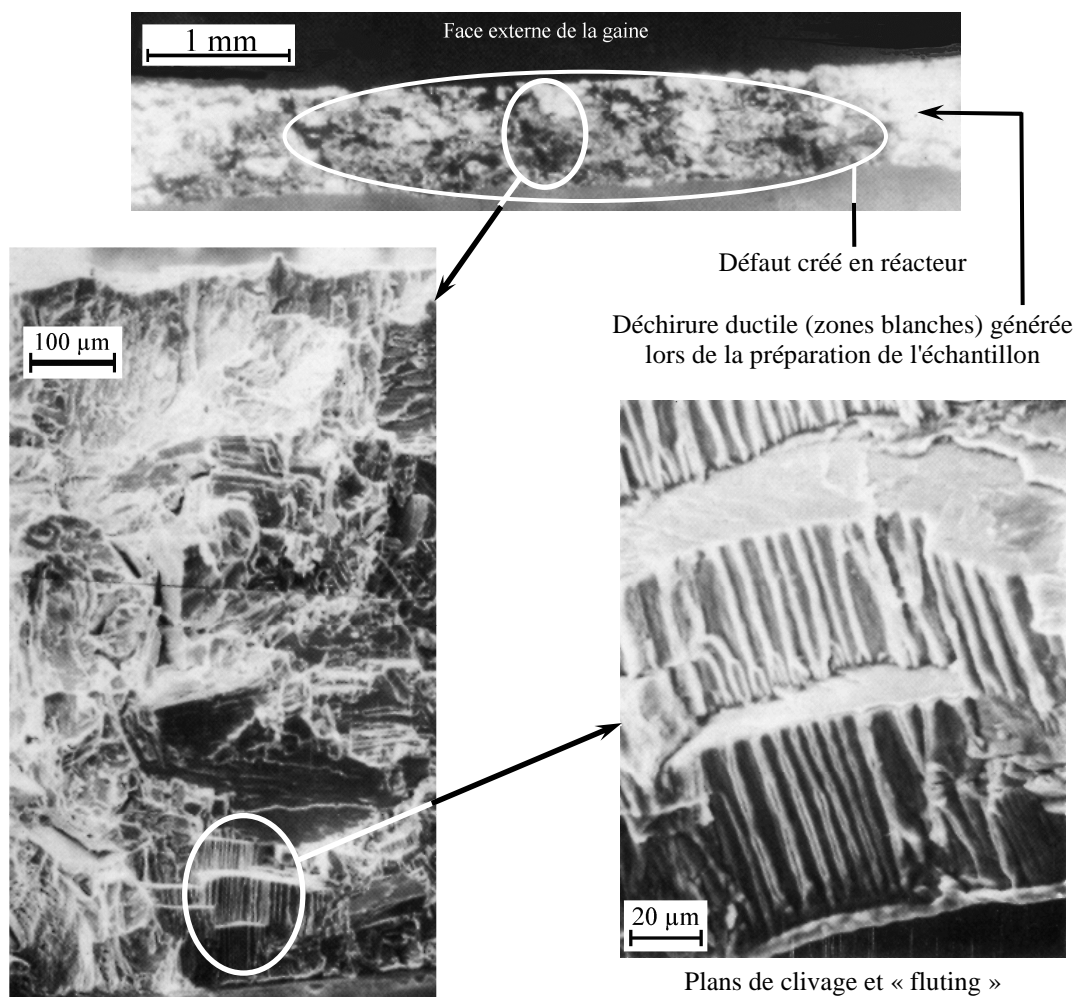


FIG. II-6. Défaut d'un crayon REP non rompu – fig. II-2(b) [Fuhrman et al. 1977].  
(A) Plans de quasi-clivage, (B) Déchirure ductile lors de la préparation de l'échantillon.



Matériau de gainage : Zircaloy-2 détendu, jeu diamétral pastille-gaine initial de 0,19 mm, taux de combustion de 6 GWj/tU.

FIG. II-7. Rupture d'une gaine issue du réacteur britannique SGHWR Winfrith (Steam Generating Heavy Water Reactor) [Bond et al. 1977].



### 3 ÉTUDE EN RÉACTEUR EXPÉRIMENTAL DE L'ORIGINE DES RUPTURES DE GAINÉ

Les travaux conduits à Vallecitos entre 1963 et 1966 furent connus de peu de chercheurs de l'époque jusqu'en 1972. Seuls quelques-uns d'entre eux (Davies pour General Electric aux États-Unis, Wood au Canada, Garlick au Royaume-Uni, Lunde en Norvège) perçurent les conséquences considérables que pourraient avoir ces ruptures de gaine si elles se produisaient en réacteur industriel. Ils étaient, de plus, convaincus que les ruptures observées dans les réacteurs expérimentaux (GETR aux États-Unis, SGHWR en Grande-Bretagne, Halden en Norvège) étaient liées aux phénomènes d'interaction pastille-gaine et de corrosion sous contrainte.

Lorsque les premières ruptures en service intervinrent, divers programmes expérimentaux virent le jour. Comme les ruptures suivent des transitoires de puissance, la simulation en réacteur expérimental des conditions de fonctionnement en réacteur de puissance consiste à faire subir au crayon combustible un transitoire de puissance bien défini, appelé « rampe ». Le crayon peut, dans un premier temps, être amené ou non à une puissance intermédiaire, aussi appelé palier de « conditionnement ». Le crayon subit alors le transitoire de puissance, défini par les paramètres suivants : la puissance maximale  $P_{\max}$ , la variation de puissance  $\Delta P$  durant le transitoire, le temps de maintien à la puissance maximale ou durée du « palier haut »  $\omega$  et la vitesse de montée en puissance  $\dot{P}$  (figure II-8).

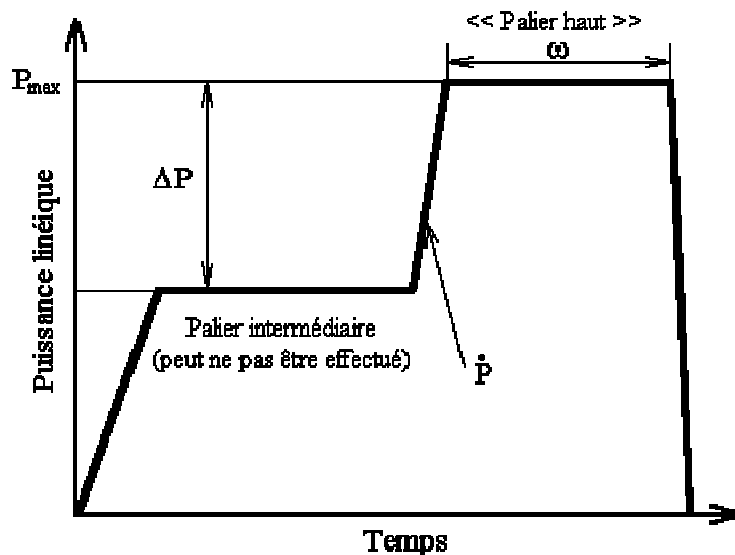


FIG. II-8. Définition d'un transitoire de puissance en réacteur expérimental.

*Les dommages liés à l'irradiation sont-ils à l'origine des ruptures ?*

De nombreux chercheurs étaient persuadés que, du fait de l'absence de déformation importante de la gaine au niveau des ruptures, ces dernières avaient pour origine la fragilisation et la diminution de la ductilité engendrées par l'irradiation et/ou l'implantation par recul des produits de fission dans le gainage des crayons.

Les travaux, entre autres, de Mac Donald *et al.* [1973] et Davies *et al.* [1977] montrèrent sans équivoque que l'origine des ruptures n'était liée ni à la perte de ductilité, ni à l'endommagement par implantation. Ces expériences se basaient sur la fabrication de crayons combustibles expérimentaux qui utilisaient des pastilles neuves d'oxyde d'uranium et du gainage irradié en réacteur (alliages de zirconium issus soit de crayons combustibles, donc soumis à l'irradiation et aux produits de fission [Mac Donald *et al.* 1973, Davies *et al.* 1977], soit de barres de contrôle endommagées uniquement suite aux effets de l'irradiation [Davies *et al.* 1977]). Ces crayons subissaient une montée en puissance très sévère et étaient maintenus à une puissance maximale

très élevée pendant plusieurs jours (environ  $800 \text{ W.cm}^{-1}$  [Mac Donald et al. 1973]) sans rompre, alors que des crayons irradiés avec le même gainage avaient tous rompus pour des puissances maximales bien inférieures. Ces crayons « combustible neuf - gaine irradiée » cassaient tous lors de la seconde irradiation expérimentale à des niveaux de puissance inférieurs. Les ruptures furent attribuées à la reconstitution d'un environnement chimique propice à la corrosion sous contrainte.

A *contrario*, des crayons contenant du combustible irradié et possédant un gainage neuf [Davies et al. 1977], dont on peut voir un exemple sur la figure II-9 ci-contre, ou une gaine irradiée ayant subi un recuit (afin de supprimer les défauts liés à l'irradiation), rompaient à des niveaux de puissance équivalents à ceux des crayons irradiés d'où provenait le combustible irradié. Ces expériences avaient pour but de montrer l'aspect chimique intervenant dans les ruptures pour des crayons ayant atteint un taux de combustion appréciable. Lors de ces essais en réacteur, certains de ces crayons étaient « dopés », c'est-à-dire contenant des espèces simulant des produits de fission (I, Cs, Te, CsI). Seuls les crayons dopés avec de l'iode rompaient, les autres crayons conservaient leur intégrité, leur gaine présentant des déformations permanentes importantes.

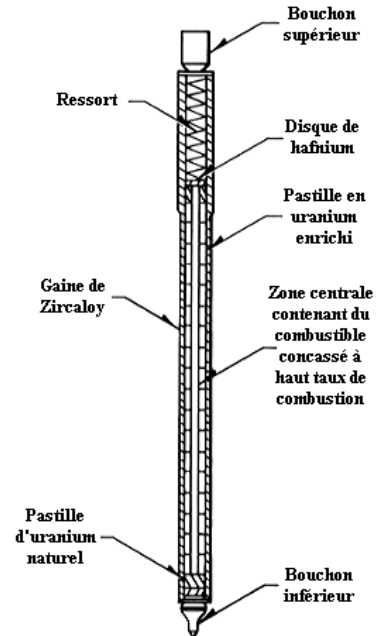


FIG. II-9. Crayon « combustible irradié - gaine neuve » [Davies et al. 1977].

#### *Ces ruptures de gaine sont-elles des ruptures différées par l'hydrogène ?*

L'hydruration de la gaine a également été envisagée, initialement, comme mode de rupture. Lorsque la rupture intervient en réacteur, de l'eau (fluide caloporteur) peut alors pénétrer à l'intérieur du crayon combustible par la fissure débouchante. Cette eau provoque, d'une part, l'oxydation des faciès de fissuration, les rendant très difficilement observables, et, d'autre part, la précipitation d'hydrures sur les lèvres de cette fissure. La visualisation de ces hydrures a alors fait penser que l'hydruration était le mécanisme responsable de la rupture des crayons. Malheureusement, les ruptures différées par hydruration se sont généralisées dans les réacteurs industriels, notamment dans les réacteurs de la filière CANDU (ruptures uniquement des tubes de force en alliage Zr - 2,5 % Nb) [Cox 1990 a], à la même période que les ruptures par interaction pastille-gaine et corrosion sous contrainte. Ces ruptures intervenaient également à la remontée en puissance du réacteur, suite à son rechargement. Certains chercheurs pensèrent alors que la corrosion sous contrainte n'était qu'un cas particulier de la fissuration liée à l'hydruration. Les similitudes d'un point de vue chimique et métallurgique entre les alliages de titane et de zirconium ont conduit à supposer l'identité de ces deux processus, comme cela avait été observé sur un alliage de titane.

Les travaux de Cox [1978], rapportés dans sa synthèse [Cox 1990 a], montrent que les deux processus sont différents, d'une part, par leur cinétique et, d'autre part, par l'aspect fractographique des faciès obtenus. Dans le domaine de températures concerné par la corrosion sous contrainte en réacteur, les plaquettes d'hydrures ont un comportement ductile. À température ambiante, ces plaquettes deviennent fragiles. La propagation d'une fissure par hydruration ne se produit que si les hydrures sont rompus.

Les cinétiques des deux phénomènes sont différentes, premièrement, par les domaines de température d'apparition des phénomènes, deuxièmement, par les vitesses de propagation

(comme le montre la figure II-10) et, troisièmement, par le temps d'incubation très élevé de la fissuration par hydrogène (liée à la nécessaire précipitation des hydrures).

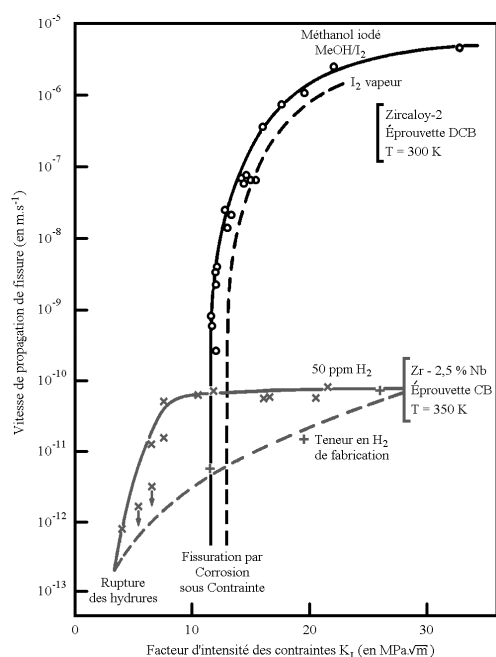
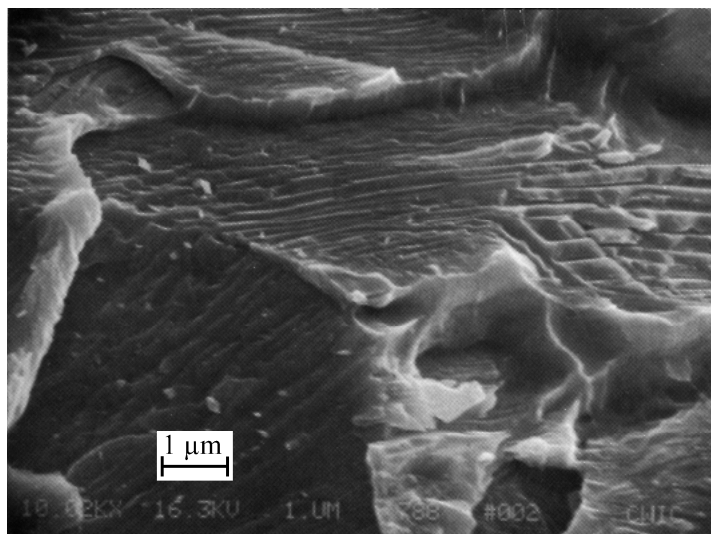


FIG. II-10. Comparaison des vitesses de propagation en fonction de  $K_I$  [Cox 1978].



Alliage : Zr - 2,5 % Nb recristallisé

FIG. II-11. Rupture d'hydrures. Structure de « marches » [Cox 1978].

L'analyse fractographique menée par Cox [1978] montre que les deux processus possèdent des caractéristiques différentes. La présence de « fluting » est une caractéristique de la propagation transgranulaire que l'on ne retrouve pas pour la rupture par hydruration. Les ruptures des hydrures présentent une structure de « marches », visible sur la figure II-11, observable sur les surfaces planes des hydrures intragranulaires rompus ou sur les surfaces courbes des hydrures intergranulaires rompus. Cette structure se situe à une échelle inférieure à celle du grain. Ces « marches » sont, par ailleurs, observées quelles que soient la taille ou la forme des grains. La figure II-12 montre les différences de faciès entre ces deux processus, lorsque ceux-ci se produisent en même temps.

Il a été rapidement admis que les ruptures de gaine par interaction pastille-gaine et la fragilisation par l'hydrogène sont deux modes de rupture différents de la gaine, contre lesquels il est nécessaire de lutter afin d'augmenter la rentabilité des centrales nucléaires.

## 4 MISE EN PLACE DE REMÈDES AUX RUPTURES DE GAINÉ

### 4.1 ÉTUDE DES REMÈDES

Les expériences décrites au paragraphe précédent et l'analyse de transitoires intervenus dans des réacteurs industriels ont permis de définir les limites technologiques des crayons combustibles, ainsi que des règles de conduite des réacteurs, afin de minimiser l'interaction pastille-gaine lors de variations de puissance (une vitesse de montée lente permet de limiter l'augmentation des contraintes dans la gaine en favorisant leur relaxation au cours de la montée). Ces limites donnent le risque (de manière probabiliste pour la filière CANDU [Penn et al. 1977] ou déterministe par EDF [Permezel et al. 1994]) de rupture d'un crayon suite à un transitoire de puissance, tel que décrit sur la figure II-8, en fonction du taux de combustion, de la puissance maximale  $P_{\max}$ , de l'écart de puissance  $\Delta P$  et du temps  $\omega$ . Ces règles de conduite sont sans cesse affinées et sont toujours appliquées actuellement.

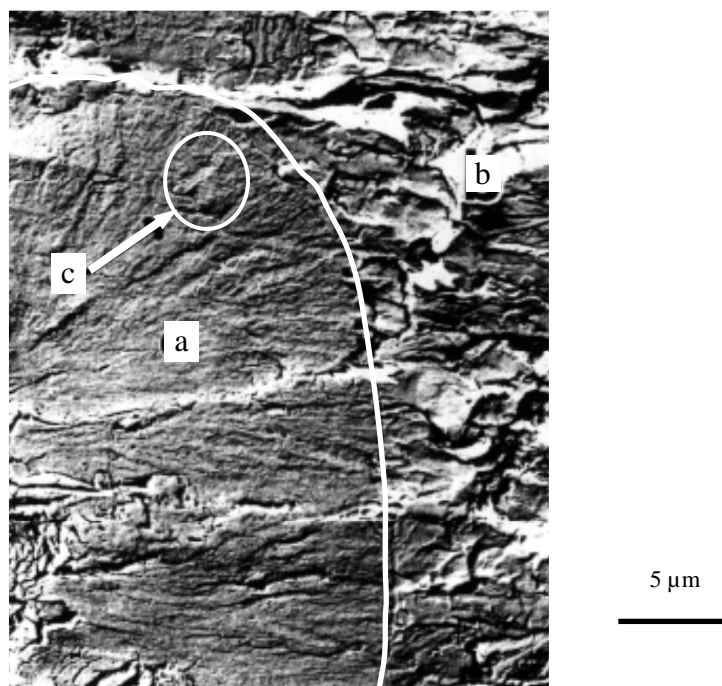


FIG. II-12. Rupture d'un alliage Zr - 2,5 % Nb [Cox 1978].

(a) Zone de corrosion sous contrainte, (b) rupture due à la fragilisation par l'hydrogène, (c) plaquettes d'hydrures rompues, isolées dans la zone de corrosion sous contrainte.

Parallèlement à la mise en place de ces règles de conduite, l'étude de remèdes liés à la conception du combustible fut entreprise. Afin de limiter la corrosion sous contrainte, deux types de remèdes furent envisagés : le premier consistant à empêcher l'accès des produits de fission à la gaine ou diminuer leur action, le second devant diminuer les effets mécaniques liés à l'interaction pastille-gaine. Les méthodes étudiées ne doivent pas modifier les caractéristiques neutroniques et thermiques que le matériau de gainage doit impérativement respecter.

Pour la filière REB, la méthode retenue est l'introduction d'une couche interne de zirconium sur la gaine (couche de 70 µm remplaçant 10 % de l'épaisseur de la gaine en Zircaloy-2 recristallisé). Ce choix du zirconium, choix respectant les critères neutroniques, fut motivé par la « plus grande » résistance à la corrosion sous contrainte du zirconium. L'effet très bénéfique de cette barrière sur la corrosion sous contrainte a été démontré en laboratoire [Tomalin et al. 1979], puis en réacteur (expérimental et de puissance) [Davies et al. 1979]. Le cuivre fut également envisagé (la couche étudiée avait une épaisseur de 15 µm), mais il n'a pas été retenu pour des raisons neutroniques (car le cuivre possède une section efficace d'absorption des neutrons élevée). Dans le cas de la filière CANDU, une barrière lubrifiante, dite CANLUB pour CANDU LUBrification [Bain et al. 1973], fut mise en place. Le matériau choisi fut le graphite. Son rôle lubrifiant (diminution du frottement entre la pastille et la gaine) a été démontré, mais l'évolution de son comportement sous l'action de l'irradiation et des produits de fission reste inconnue (surtout pour de forts taux de combustion).

La démonstration en réacteur, pour des transitoires sévères, du bon comportement des solutions envisagées pour les filières REB et CANDU ont conduit à leur adoption en réacteur industriel, ce qui conduisit à une diminution très importante des ruptures de crayons [Cox 1990 b] et, par conséquent, à une augmentation importante de la disponibilité des réacteurs. Dans le cas de la filière REP, le nombre de ruptures était très faible et le respect des règles de conduite du réacteur, qui furent édictées, suffirent à résoudre le problème.

## 4.2 RUPTURES DE GAINES : UN PROBLÈME RÉSOLU ?

Suite à l'adoption des barrières et des règles de conduite, les autorités de sûreté nucléaire américaines, la Nuclear Regulatory Commission (NRC), décidèrent en 1982 que le problème de rupture par interaction pastille-gaine en réacteur était résolu, les programmes de recherche sur la corrosion sous contrainte engagés se terminèrent, puis furent clos, même s'il subsistait des zones d'ombre dans la compréhension du phénomène. De plus, la part de l'énergie nucléaire dans la production d'électricité de nombreux pays est limitée (environ 20 % aux États-Unis et au Canada, 30 % en Allemagne...). Les réacteurs nucléaires fonctionnent alors à des régimes de puissance stables et constants, n'impliquant pas ou très peu de variations de puissance. Les risques de rupture sont donc minimes et la rentabilité des centrales suffisante pour que le problème de la corrosion sous contrainte en réacteur ne soit plus un obstacle.

Par contre, la part de l'énergie nucléaire, très importante en France (environ 80 %), impose qu'une partie des réacteurs EDF soit mobilisée pour répondre, le plus rapidement et le mieux possible, à la demande et ainsi optimiser la production, tout en diminuant les coûts. Cette réponse à la demande implique des variations de puissance, parfois importantes, au cours desquelles l'intégrité de la gaine doit être strictement respectée.

## 5 CONCLUSIONS

Nous avons pu voir au cours de ce chapitre quelle fut la difficulté de démontrer que la corrosion sous contrainte était à l'origine des ruptures de gaine observées en réacteur, du fait de la complexité des phénomènes mis en jeu dans un crayon combustible.

La mise en place de remèdes industriels satisfaisants a entraîné un déclin de la recherche dans ce domaine, même s'il subsiste encore des zones d'ombre sur le sujet, comme le reconnaissent Cox [1990 b] et Sidky [1998] dans leur synthèse respective.

En France, tout du moins, l'ajustement et/ou l'assouplissement des règles de conduite en vigueur, afin de permettre une optimisation de la production électrique en fonction de la demande, supposent une modélisation du phénomène de corrosion sous contrainte la plus exacte possible afin de garantir l'intégrité de la gaine et son rôle de première barrière contre la dissémination des produits radioactifs.

Dans ce but, le prochain chapitre fait un état des lieux des connaissances sur le phénomène et montre la difficulté à transposer les résultats expérimentaux obtenus en laboratoire aux conditions régnant en réacteur.

**CHAPITRE III.**  
**ÉTUDE EN LABORATOIRE DE LA CORROSION**  
**SOUS CONTRAINTE DES ALLIAGES DE ZIRCONIUM**

Parallèlement aux études conduites en réacteurs, décrites dans le chapitre précédent, la corrosion sous contrainte des alliages de zirconium a fait l'objet de multiples recherches en laboratoire, afin de déterminer les mécanismes de ce processus.

Par la suite, nous verrons que tous les alliages de zirconium sans distinction, sont susceptibles d'être soumis à la corrosion sous contrainte [Garlick et al. 1971, Goryachev et al. 1992].

## 1 DESCRIPTION DU PHÉNOMÈNE

Le phénomène de corrosion sous contrainte peut être décrit par la succession des phénomènes suivants :

- la période d'incubation du produit agressif sur la surface du Zircaloy, durée pendant laquelle les conditions chimiques de l'attaque s'établissent ;
- la phase d'amorçage de la fissure, précédée de la rupture de la couche ou du film protecteur de zircone ( $ZrO_2$ ) ;
- le développement intergranulaire de la fissure ainsi amorcée, qui correspond à l'attaque du Zircaloy le long des joints de grains (voir fig. III-1) ;
- la phase de propagation transgranulaire de la fissure, caractérisée par la présence de plans de clivage associés à des cannelures (ou « flutings »), comme le montre la figure III-2 ;
- la rupture par déchirure ductile du reste du ligament (présence de cupules, caractéristiques de ce type de déchirure, sur les faciès de rupture).

On notera les similitudes entre les figures III-1 et III-2 et les figures II-5 et II-7 du chapitre précédent.



FIG. III-1. Développement intergranulaire.  
Zircaloy-4 recristallisé [Schuster et al. 1992].

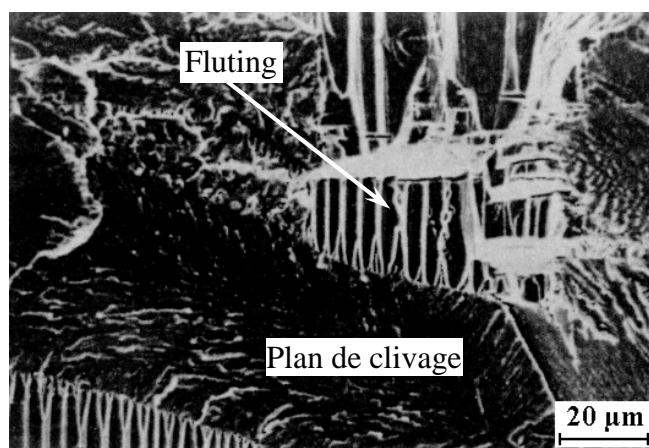


FIG. III-2. Propagation transgranulaire.  
Zircaloy-4 recristallisé [Schuster et al. 1992].

Cox [1990 b] utilise une description plus morphologique du phénomène en trois étapes, description communément admise par tous les auteurs. La première étape, dite d'amorçage, englobe les deux premiers stades du schéma précédent. Schuster *et al.* [1992] préfèrent parler de « localisation de l'effet de l'iode ». La deuxième étape correspond à la phase de développement intergranulaire et la troisième, dite de propagation, à la phase transgranulaire (suivie de la rupture ductile). La définition de l'amorçage des fissures varie suivant les auteurs. Pour Videm et Lunde [1979], l'amorçage est la phase de développement de la fissure qui ne peut être décrite par la mécanique de la rupture. Nous retiendrons l'approche, plus expérimentale, de Jacques [1994], à savoir : l'amorçage correspond à l'ouverture d'une fissure ou d'une cavité de quelques micromètres (taille minimale pouvant être observée expérimentalement). Les études menées sur l'amorçage des fissures par Steinberg *et al.* [1983] et Bibilashvili *et al.* [1996 a] définissent l'amorçage de la même manière. Le passage de la phase de développement intergranulaire à la propagation transgranulaire (décrite par la mécanique linéaire de la rupture) est déterminé, selon tous les auteurs, par le franchissement, en fond de fissure, d'un facteur d'intensité des contraintes seuil, noté  $K_{I\text{CSC}}$ .

## 2 ENVIRONNEMENT CHIMIQUE ET CORROSION SOUS CONTRAINTE

Dans ce paragraphe, nous allons aborder l'aspect chimique de la corrosion sous contrainte. Nous nous attarderons, dans un premier temps, sur la corrosion engendrée par l'iode, car elle a fait l'objet de presque toutes les études de corrosion sous contrainte des alliages de zirconium. Nous verrons ensuite la corrosion liée à d'autres produits de fission.

### 2.1 CORROSION SOUS CONTRAINTE PAR L'IODE

#### 2.1.1 Attaque chimique par l'iode

Dans ce paragraphe, nous allons nous intéresser à l'aspect chimique de la corrosion sous contrainte par l'iode, qui a fait l'objet d'une récente synthèse par Sidky [1998]. Cette analyse permettra également de mettre en évidence le rôle de paramètres mécaniques sur la corrosion sous contrainte.

On peut retenir que l'établissement préalable d'un équilibre chimique semble indispensable à l'attaque des alliages de zirconium. La formation d'iodures de zirconium volatils ( $\text{ZrI}_x$ ,  $x > 2$ ), suivant la réaction  $\text{Zr} + x \text{I} \leftrightarrow \text{ZrI}_x$ , correspondrait à cette étape ([Wood 1972, Peehs *et al.* 1979]). Selon Sidky [1998], la durée  $t$  d'action de l'iode sur des éprouvettes non contraintes, conduisant à l'apparition de fissures lors de l'application d'une contrainte, est comprise entre :  $3 - 15 \leq t \leq 30 - 60$  minutes. On peut remarquer une grande dispersion des valeurs qui pourrait être liée à des conditions et protocoles expérimentaux différents. Les travaux de Peehs *et al.* [1979], menés sur des anneaux en fluage, montrent que l'application de l'iode avant le chargement réduit le temps à rupture de l'éprouvette (voir fig. III-3). De même, d'après les travaux de Cox et Haddad [Haddad *et al.* 1986, Cox *et al.* 1987], l'action de l'iode vapeur (et d'un mélange gazeux Cs/Cd) sur des anneaux non contraints conduit à l'apparition de fissures, lorsque ces anneaux sont soumis à une contrainte durant moins de 10 s (un cycle triangulaire de compression). Certains de ces sites d'amorçage sont transgranulaires, mais Cox [1990 b] reconnaît que les fissures ne se développent pas à partir de ces sites. Ces expériences confirment, selon Cox [1990 b], que cette étape chimique n'est pas une étape du processus de corrosion sous contrainte lors de transitoires de puissance en réacteur, l'équilibre chimique étant déjà établi avant le début de ces variations ; ceci reste toutefois un problème ouvert à l'heure actuelle.

Jacques [1994] rapporte dans sa thèse que des éprouvettes non contraintes en méthanol iodé à température ambiante (pour des concentrations de  $10^{-3}$  g à  $10^{-2}$  g d'iode par gramme d'alcool) sont attaquées de manière intergranulaire (certains grains pouvant être déchaussés).

Lorsque l'équilibre chimique a été établi, l'iode, initialement mis au début de l'expérience, continue de réagir avec l'alliage de zirconium [Sidky 1998] et également avec les éléments de structure du dispositif expérimental (perturbant les résultats dans certains cas). Lors de l'application du chargement, un nouvel équilibre chimique favorable est à reconstituer, afin de permettre le développement des fissures. Ceci semble d'autant plus vrai en réacteur, où les conditions chimiques évoluent sans cesse, compte tenu du nombre d'espèces impliquées et des effets de l'irradiation (radiolyse).

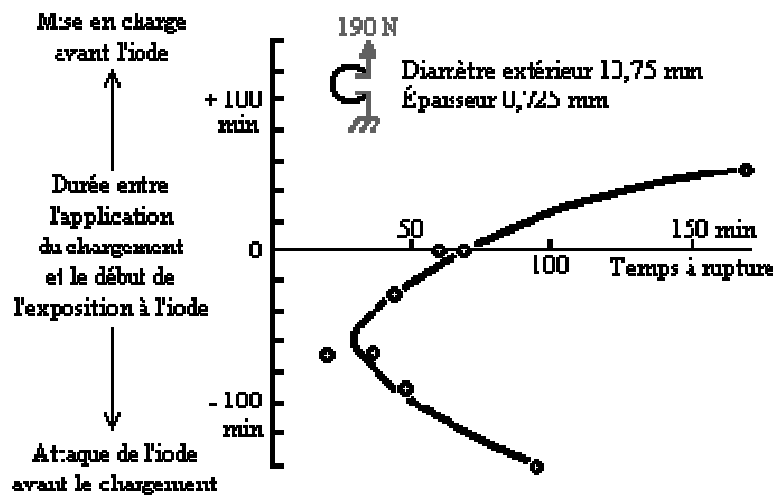


FIG. III-3. Influence sur le temps à rupture de la durée d'exposition à l'iode avant ou pendant le chargement [Peehs et al. 1979].

Selon Une [1984], la méthode utilisée pour créer l'atmosphère iodée agressive peut avoir des conséquences sur les résultats. La première méthode, souvent utilisée pour des raisons pratiques, consiste à placer une quantité définie d'iode sous forme de cristaux solides dans l'enceinte expérimentale (ou dans le tube pour l'essai de pressurisation interne) à la température ambiante. L'iode se vaporise lors de la montée en température de l'éprouvette. Le milieu corrosif est clos et confiné. Dans la seconde méthode [Une 1979, Atrens et al. 1984, Bairo et al. 1986, Goryachev et al. 1992], la pression partielle de l'iode est maintenue par un débit constant en mélange gazeux (gaz inerte et iode). L'analyse des résultats d'essais conduits en milieu iodé confiné montre un domaine de vitesse de déformation moyenne où la sensibilité à la corrosion sous contrainte est maximale (fig. III-4 et III-5).

Par contre, les expériences de corrosion sous contrainte utilisant la seconde méthode pour créer l'environnement corrosif ne mettent pas en avant ce domaine de vitesses de déformation intermédiaires, mais plutôt une valeur supérieure au domaine de sensibilité à la CSC, comme le montrent les figures III-6 et III-7.

Dans le cas d'un milieu clos, l'explication avancée par Une [1984], d'un comportement proche de celui en milieu inerte pour de faibles vitesses de déformation, est d'origine chimique plutôt que mécanique. Au cours du temps, l'environnement chimique évolue et l'iode élémentaire, introduit initialement, se transforme en iodures de zirconium qui sont de moins en moins volatils ( $ZrI_4$  est une espèce très volatile,  $ZrI$  et  $ZrI_2$  sont solides) et donc moins susceptibles de corroder l'alliage de zirconium (hypothèse avancée par Fairman [1977] et Peehs et al. [1979] - fig. III-3). Ceci est d'autant plus vrai que les essais sont de plus longue durée.



Tubes en Zircaloy-4 détendu - Conditions d'essai :  $350 \leq T \leq 450$  °C et  $150 \leq \Sigma_{\theta\theta} \leq 250$  MPa

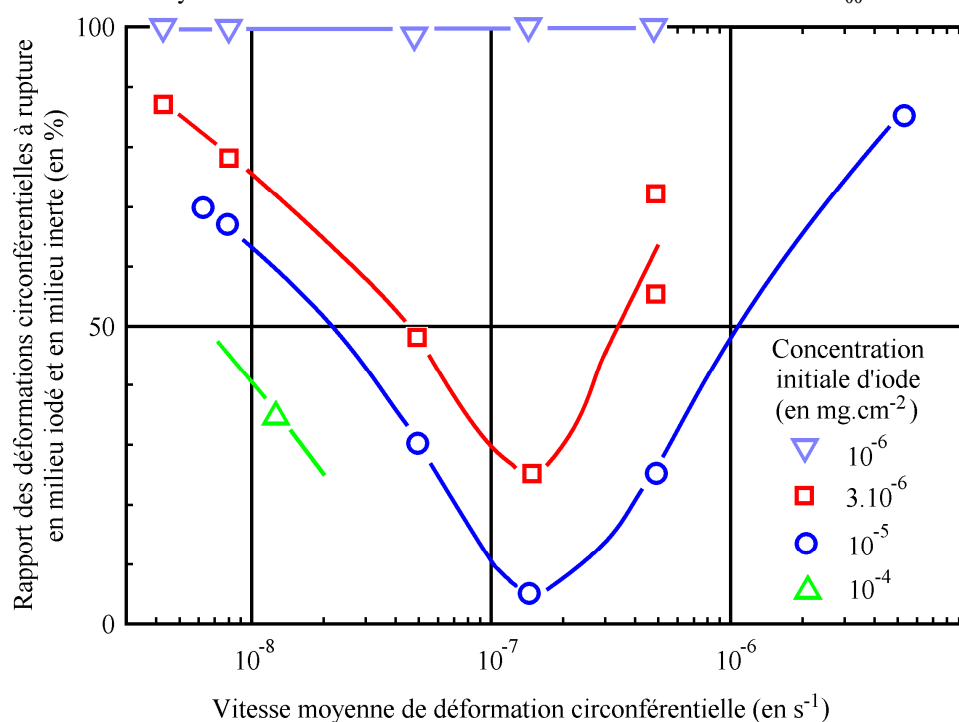


FIG. III-4. Influence de la vitesse de déformation sur la ductilité en présence d'iode en milieu confiné [Peehs et al. 1979].

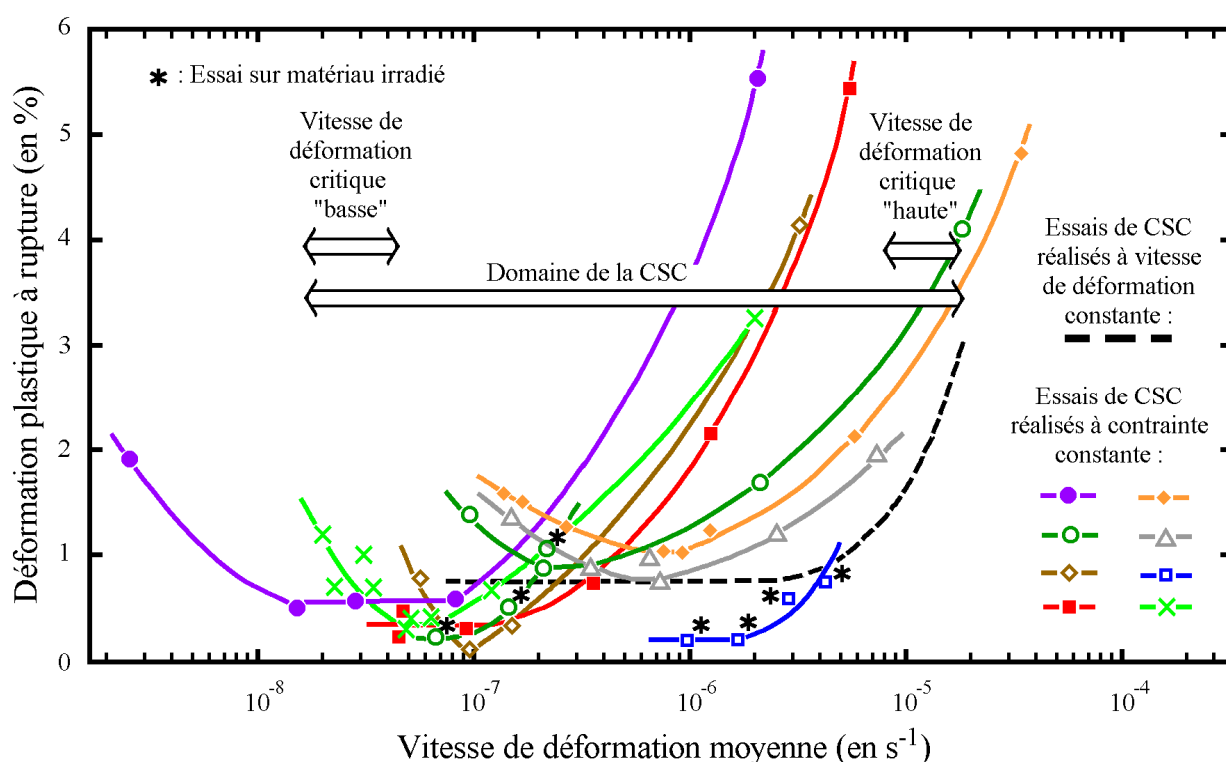


FIG. III-5. Influence de la vitesse de déformation sur la déformation à rupture en milieu iodé confiné (synthèse de Une [1984]).

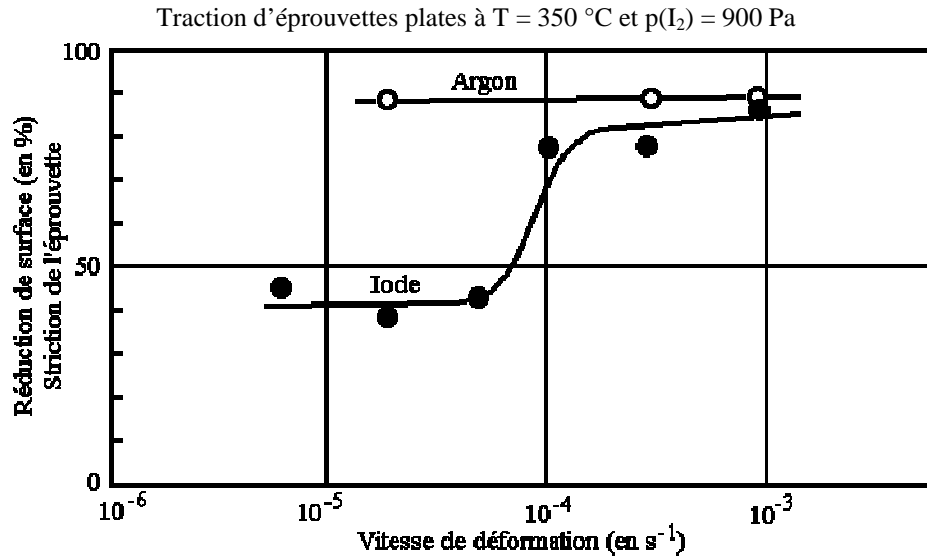


FIG. III-6. Influence de la vitesse de déformation sur le coefficient de striction avec ou sans iode sur du Zr - 1 % Nb recristallisé (milieu sous flux constant en iode) [Goryachev et al. 1992].

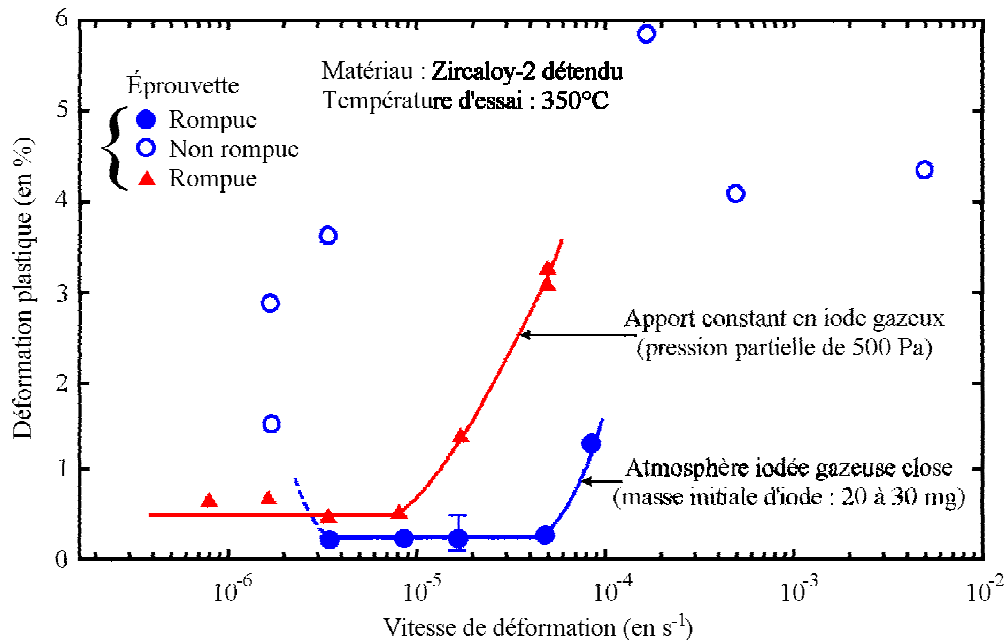


FIG. III-7. Influence de la vitesse de déformation sur la ductilité en présence d'iode - Comparaison entre un milieu sous flux constant en iode et un milieu iodé confiné [Une 1984].

Shann et Olander [1983] ont également étudié l'action sur les alliages de zirconium d'iodures métalliques tels que les iodures de fer et d'aluminium. Ces études ont été motivées par le comportement de l'iodure de césium décrit auparavant, à savoir qu'il ne provoque pas la corrosion sous contrainte. Le fer et l'aluminium sont-ils eux aussi des inhibiteurs en s'associant avec l'iode ?

La corrosion sous contrainte du Zircaloy est observée par Shann et Olander pour ces deux types d'iodures. Wood [1972] connaissait déjà le rôle catalyseur du fer, qui n'est donc que confirmé. Par contre, le rôle de l'aluminium dans la corrosion sous contrainte est à noter, bien qu'il n'ait pas été étudié par d'autres auteurs. En effet, l'aluminium et l'alumine sont utilisés dans certains tests d'expansion de mandrin [Wood et al. 1975, Tomalin et al. 1979]. Les iodures de zirconium et de fer sont des espèces volatiles, réagissant fortement avec l'air et l'humidité, ce qui les rend difficiles à observer sur les faciès de rupture. Ceci n'est pas le cas avec l'aluminium, qui est

présent sur les faciès de rupture associés à la propagation de la fissure par corrosion sous contrainte [Shann et Olander 1983], ce qui traduirait une interaction au cours de la fissuration entre le composé  $\text{AlI}_2$  (utilisé comme agent gazeux corrosif) et le Zircaloy.

Cette analyse de l'environnement iodé régnant au cours des expériences nous a permis, d'une part, de voir l'influence de la méthode de création de l'environnement agressif et, d'autre part, de constater l'existence d'une « vitesse de déformation seuil », en dessous de laquelle la corrosion sous contrainte est prépondérante. Pour des vitesses supérieures, les comportements en milieux inerte et agressif sont identiques, le comportement en fluage du matériau régissant le comportement de l'éprouvette.

### 2.1.2 Existence de l'iode en réacteur

L'iode est un produit de fission abondant dans un crayon combustible, il représente 1 % des produits formés lors de la fission des atomes d'uranium et de plutonium du combustible. C'est une espèce volatile, que l'on retrouve sous forme gazeuse dans le jeu pastille-gaine.

La quantification de l'iode, qui serait disponible, lors de transitoires de puissance en réacteur, pour attaquer la gaine et conduire, dans certains cas, à sa rupture, a été l'objet de nombreuses études, car de nombreux auteurs pensaient que l'iode n'était pas en quantité suffisante [Konashi et al. 1984]. En effet, l'iode constitue très facilement avec le césium, qui est le produit de fission le plus abondant, l'iodure de césium  $\text{CsI}$  ( $\text{Cs} + \text{I} \leftrightarrow \text{CsI}$ ), corps très stable, d'un point de vue thermodynamique, très volatil, et qu'il est possible d'observer sur la face interne de la gaine, sous forme de cristaux blancs [Cubiciotti et al. 1978]. Les expériences menées en laboratoire [Hofmann et al. 1981, 1982, 1983, 1984] et en réacteur [Davies et al. 1977] montraient que la corrosion sous contrainte des alliages de zirconium par le  $\text{CsI}$  (gazeux) n'était pas possible. Par contre, Cox et al. [1986] observaient le contraire ; il est à noter que l'iodure de césium se présentait sous forme d'une pâte qui était appliquée sur la face interne des anneaux utilisés dans leurs expériences.

Les premiers calculs thermodynamiques indiquaient que la pression partielle de l'iode disponible en réacteur était de  $10^{-19}$  atm, valeur inférieure à la densité d'atomes dans le « vide interstellaire » [Konashi et al. 1983 et 1984]. Pour les expériences de laboratoire, des calculs analogues montraient, en accord avec les résultats expérimentaux, que la quantité d'iode libérée par le  $\text{CsI}$ , suivant la réaction chimique  $\text{CsI} \leftrightarrow \text{Cs} + \text{I}$ , était inférieure à la concentration en iode critique nécessaire pour engendrer la corrosion sous contrainte. Cependant, la réalité n'est pas aussi simple. L'environnement chimique dans un crayon combustible est beaucoup plus compliqué que celui créé en laboratoire. En effet, le césium peut se combiner avec de nombreux éléments présents dans la pastille (autres produits de fission, uranium et oxygène), s'associant moins avec l'iode. Des mesures de la température d'activation de la migration dans le combustible et du relâchement hors de la pastille de l'iode, inférieures à celle du césium, soutiennent l'hypothèse que de l'iode libre pourrait être présent dans la pastille puis relâché dans le jeu pastille-gaine.

Hofmann et al. [1985] ont montré, qu'en présence d'oxyde d'uranium surstoechiométrique ( $\text{UO}_{2+x}$ ,  $x > 0$ ), la corrosion sous contrainte par le  $\text{CsI}$  était alors possible, le surplus d'oxygène ( $\text{O}_x$ ) permettant alors la réduction du  $\text{CsI}$  et la formation d'iode libre ( $n \text{CsI} + m \text{O} \leftrightarrow n \text{I} + \text{Cs}_n\text{O}_m$ ). En réacteur, le combustible devient surstoechiométrique, du fait de la fission des atomes d'uranium. L'oxygène (ainsi disponible) est à l'origine de la formation de la couche irrégulière de zircone, de faible épaisseur (quelques  $\mu\text{m}$ ), sur la face interne de la gaine. Malheureusement, ces expériences de Hofmann et al. [1985] ont été menées à des températures supérieures à

500 °C, c'est-à-dire supérieures aux températures de la gaine rencontrées en fonctionnement normal en réacteur. Il est alors légitime de se poser la question de l'extrapolation de ces résultats pour ces températures, comprises entre 350 et 450 °C.

L'hypothèse la plus probable de la présence d'iode libre dans le jeu serait liée à la décomposition par radiolyse de l'iodure de césium, mise en évidence par Cubicciotti *et al.* [1976], et sensiblement augmentée par la présence d'hélium. Des éprouvettes sollicitées (anneaux [Cox *et al.* 1986], tubes en pressurisation interne [Bibilashvili *et al.* 1986]) dans une atmosphère de CsI, en présence d'une source d'irradiation, rompent par corrosion sous contrainte.

Selon Cox [1990 b], les transitoires effectués en réacteur par Davies *et al.* [1977] sur des crayons combustibles contenant des pastilles neuves « dopées au CsI » (voir chap. II, § 3) ne créaient pas de fissures de corrosion sous contrainte, car ils étaient conduits trop rapidement pour permettre le relâchement d'une quantité suffisante de CsI, pouvant alors être décomposé dans le jeu. Les premiers calculs<sup>1</sup> intégrant l'hypothèse de radiolyse du CsI montraient que la pression partielle de l'iode dans le jeu était beaucoup plus importante que lorsque l'on omettait la décomposition radiolytique, mais restait, toutefois, inférieure à la pression partielle critique nécessaire pour corroder la gaine [Konashi *et al.* 1984].

Fregonese [1997] a évalué la quantité d'iode qui serait disponible dans le jeu pour la corrosion sous contrainte, en prenant en compte tous les phénomènes connus et les hypothèses souvent posées (une hypothèse, généralement admise, est qu'environ 10 % des produits de fission volatils ou gazeux formés, dont l'iode, se retrouvent dans le jeu). Le résultat de son étude montre que l'iode relâché au cours d'une rampe de puissance conduite en réacteur expérimental sur un crayon, qui a été irradié pendant deux cycles en réacteur de puissance, est localement (au niveau des plans interpastilles) en quantité suffisante pour provoquer la corrosion sous contrainte et conduire à la rupture de la gaine, si les conditions mécaniques sont réunies. Le tableau III-1 regroupe les résultats de Fregonese [1997].

TABEAU III-1. Concentration d'iode en réacteur et valeurs seuils expérimentales.

Concentration locale en réacteur calculée [Fregonese 1997]	Valeurs seuils établies en laboratoire (valeurs disponibles dans la littérature)
0,005 à 0,5 mg.cm <sup>-2</sup>	0,001 à 2,5 mg.cm <sup>-2</sup>

Différentes hypothèses concernant la surface de la gaine attaquée par l'iode sont à l'origine des variations de concentration calculées par Fregonese [1997]. Par contre, les dispersions des valeurs seuils établies en laboratoire sont à relier aux protocoles expérimentaux utilisés et notamment la durée au terme de laquelle la rupture n'est pas intervenue (de 20 à 1000 heures).

Dans un crayon combustible, la cinétique de relâchement de l'iode est mal connue. On peut penser, sans toutefois l'affirmer, que le relâchement de l'iode est un processus activé thermiquement. De plus, lorsqu'un niveau de puissance important est maintenu, l'iode, comme les produits de fission stables, serait relâché dans le jeu de manière continue (à l'image des expériences de laboratoire faites sous flux constant en iode). Une des difficultés de la transposition laboratoire / réacteur concerne l'activité chimique de l'iode. En effet, l'iode relâché serait issu des zones chaudes du combustible, donc à des températures élevées (supérieures à 1000 °C). Il est légitime de se demander si l'activité chimique de l'iode ne serait pas plus importante dans ce cas que dans les expériences de laboratoire où l'iode est porté à des températures bien inférieures (entre 300 et 400 °C).

<sup>1</sup> Toutefois certains paramètres utilisés dans ces calculs restent à vérifier, ces paramètres correspondant à une ionisation par des électrons et non par des photons (rayonnement  $\gamma$ ). De plus, l'effet de recul des produits de fission n'est pas pris en compte.

### 2.1.3 Processus d'attaque chimique : l'adsorption de l'iode

Par quel moyen, l'iode permet-il la création puis la propagation d'une fissure ?

L'iode diffuse-t-il dans le Zircaloy, comme l'hydrogène ? La fissuration du Zircaloy serait-elle, comme la rupture différée par hydrogène, un processus d'endommagement : formation dans l'alliage de composés iodés, analogue aux plaquettes d'hydrures rompant sous l'effet du chargement mécanique ?

La diffusion de l'iode dans les alliages de zirconium est un processus à exclure, comme l'ont montré Wood *et al.* [1975], Cox et Haddad [1987] et plus récemment Fregonese [1997]. Contrairement aux conclusions de Choo *et al.* [1987], qui expliquaient les résultats de leurs essais par un processus de diffusion, qui serait accélérée par la triaxialité des contraintes en fond de fissure, les travaux de Cox et Haddad [1987] indiquent que l'iode ne diffuse pas, même dans les zones très fortement contraintes.

Selon Wood [1975], la corrosion sous contrainte observée à température ambiante en méthanol iodé ne peut s'expliquer par un phénomène activé thermiquement, comme la diffusion, mais plutôt par un phénomène d'adsorption. L'iode arriverait en pointe de fissure par un phénomène de transport le long de la fissure. En fond de fissure, l'iode serait adsorbé et fragiliserait les liaisons interatomiques Zr-Zr pour former des iodures de zirconium volatils, entraînant une diminution de l'énergie de surface du zirconium [Fregonese 1997]. D'après l'étude théorique de Hwang *et al.* [1989], cette réduction serait anisotrope, à l'image de la maille hexagonale du zirconium. Dans l'état non fragilisé, l'énergie de surface serait maximale pour le plan basal (0001) et minimale pour le plan (1010) de la maille cristalline. L'adsorption de l'iode réduirait cette énergie de surface. Dans ce cas, c'est le plan basal qui posséderait la plus faible énergie de surface ; cette dernière étant maximale pour les plans inclinés de 30-50° et 75° par rapport au plan basal (plans pyramidaux). Des calculs *ab initio* permettraient de confirmer ces travaux de Hwang.

L'adsorption de l'iode semble donc intervenir dans toutes les étapes de la corrosion sous contrainte par l'iode. Cette adsorption est conditionnée par la mise à nu du métal et l'émergence des bandes de glissement [Fregonese 1997].

### 2.1.4 Essais en méthanol iodé / iode vapeur

Les essais de corrosion sous contrainte sont menés soit en méthanol iodé à la température ambiante, soit en iode vapeur au-dessus de 300 °C. Cox et Wood [1977] ont, les premiers, montré que le méthanol iodé corrodait les alliages de zirconium et que les faciès de rupture étaient identiques à ceux obtenus en iode vapeur (et en réacteur). Le tableau III-2 ci-dessous dresse quelques différences notables entre les deux milieux agressifs iodés.

TABLEAU III-2. Comparaison milieux méthanol iodé / iode vapeur.

Méthanol iodé	Iode vapeur
<ul style="list-style-type: none"> <li>– Milieu liquide</li> <li>– Température ambiante (20 °C)</li> <li>– Peu de repassivation du matériau</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>– Milieu gazeux</li> <li>– Température de la gaine en réacteur (300-450 °C) : domaine de vieillissement dynamique des alliages de Zr.</li> <li>– Repassivation du matériau autorisée par l'oxygène résiduel</li> </ul>

Le méthanol iodé, milieu plus facile à manipuler et à contrôler, a largement été utilisé pour étudier les mécanismes des différentes phases de la corrosion sous contrainte. Cependant, il n'est pas *a priori* représentatif de l'état chimique de l'iode en réacteur. De plus, les domaines de

température couverts sont différents et impliquent des cinétiques et un comportement mécanique du matériau différents. Toutefois, la compréhension et l'observation des mécanismes sont plus aisées en méthanol iodé [Jacques 1994], car ce milieu supprime les effets de passivation du Zircaloy, alors que, sous iode vapeur, il faut prendre des précautions draconiennes afin d'éviter l'oxydation des faciès par l'oxygène et la vapeur d'eau résiduels.

### 2.1.5 Conclusions partielles

Que pouvons-nous retenir de ce paragraphe 2.1 ?

Du point de vue des mécanismes, ce serait un *phénomène d'adsorption de l'iode*, couplé à un transport de ce dernier vers la pointe de la fissure, qui serait à l'origine de la corrosion sous contrainte des alliages de zirconium. La présence d'un *seuil de vitesse de déformation*, en dessous duquel la rupture s'effectue par corrosion sous contrainte et au-dessus duquel la rupture se fait par déchirure ductile, tend à indiquer qu'il y a, en pointe de fissure, une compétition entre l'adsorption de l'iode sur les surfaces créées par l'émergence de bandes de glissement et le comportement en fluage du matériau. La concentration en iode dans le jeu entre la pastille et la gaine peut être considérée, au vu des derniers travaux, comme suffisante, après un transitoire, pour provoquer la corrosion sous contrainte de la gaine.

## 2.2 CORROSION SOUS CONTRAINTE PAR D'AUTRES ESPÈCES CHIMIQUES

La corrosion sous contrainte par d'autres produits que l'iode a également fait l'objet d'études en laboratoire. Parmi les espèces étudiées, on peut citer le césium, qui est le produit de fission le plus abondant, le cadmium (0,1 % des produits de fission créés) et le tellure.

Pour ces produits, les auteurs préfèrent parler de « fragilisation par un métal liquide » plutôt que de « corrosion sous contrainte », car lors des tests en laboratoire, ces corps sont généralement présents sous forme liquide. Comme pour l'étude de la corrosion sous contrainte par l'iode, des conditions expérimentales et un environnement chimique (pollution) différents sont probablement à l'origine de divergences au niveau des résultats.

### 2.2.1 Césium

Wood *et al.* [1975] ont montré que des éprouvettes en Zircaloy-2 préfissurées (de type DCB) et sollicitées dynamiquement sont fragilisées par du césium dans le domaine de température 30-225 °C ; au-dessus de 225 °C, la rupture se produit de manière ductile. Par contre, les essais d'expansion de mandrin (à 20, 200 et 300 °C) montrent des ruptures ductiles indiscernables de celles obtenues en milieu inerte. Des essais sur bagues n'ont pas rompu après 1000 heures d'attaque par du césium liquide. Syrett *et al.* [1977] ont obtenu la fragilisation par du césium liquide en présence de fer (Cs désoxygéné et contenant 0,1 % de Fe). Il n'est donc pas à exclure que la contamination par du fer, provenant des appareils utilisés, soit à l'origine des résultats de Wood *et al.* [1975]. Les travaux conduits par Grubb et Morgan [1979] à 300 °C, Sharkawy *et al.* [1984] à 340 °C, Bairo *et al.* [Dannhäuser *et al.* 1984, Bairo *et al.* 1986] et Coffin [1979] montrent l'absence de fragilisation des alliages de zirconium par du césium liquide. Une forte dispersion des résultats obtenus est à noter. Quelques cas de rupture de type fragile (fissures intergranulaires) sont observés, mais ils restent toutefois marginaux et difficilement explicables. On peut noter que le césium réagit très fortement avec l'oxygène, ce qui implique que les tests doivent être menés avec beaucoup de précaution [Wood *et al.* 1975]. Cette réaction pourrait être la source de nombreuses incertitudes.

Par son abondance en réacteur, le césium a été envisagé comme agent agressif, mais les rares travaux effectués montrent que cette possibilité est à exclure. Cependant, son affinité chimique avec de nombreux corps présents dans le combustible fait qu'il joue un rôle important dans la

chimie du combustible et notamment sur la concentration d'iode libre qui serait présent dans le jeu pastille-gaine et disponible pour corroder la gaine.

### 2.2.2 Cadmium

Le cadmium représente environ 0,1 % des produits de fission. La fragilisation par le cadmium a été démontrée et elle présente des caractéristiques identiques à celles des ruptures par corrosion sous contrainte par l'iode en laboratoire et des ruptures par interaction pastille-gaine en réacteur.

Les essais démontrant cette fragilisation ont été conduits avec du cadmium liquide, soit seul [Hofmann et al. 1981, Dannhäuser et al. 1984, Sharkawy et al. 1984, Bairo et al. 1986], soit additionné à du césium liquide [Coffin 1979, Grubb et al. 1979, Sharkawy et al. 1984, Bairo et al. 1986]. De rares essais ont été conduits avec du cadmium sous forme gazeuse [Shann et Olander 1983, Haddad et al. 1986]. Cet effet de fragilisation des alliages de zirconium est attribué à la formation d'un composé  $Zr_xCd_y$  intermétallique, qui formerait une couche sur le Zircaloy, couche dite « de réaction » observée par Grubb et Morgan [1979], Hofmann et Spino [1981] et Sharkawy et al. [1984]. Cette couche, difficile à ôter, serait associée à de fines fissures radiales (observées après polissage [Sharkawy et al. 1984]). Les tests menés avec un mélange liquide Cs/Cd montrent une bonne reproductibilité des résultats. L'hypothèse avancée serait que le césium augmenterait la mouillabilité du cadmium, même lorsque celui-ci n'est qu'en très faible quantité dans le césium [Grubb et al. 1979]. Ceci expliquerait également pourquoi les tests effectués avec du cadmium seul en faible quantité présentent une certaine dispersion, due au faible étalement du cadmium, qui interagirait donc moins avec le Zircaloy [Sharkawy et al. 1984]. Comme pour l'iode, la présence d'oxygène lors des essais est un frein à la fragilisation par le cadmium. D'une part, l'oxygène repassive l'alliage de zirconium et, d'autre part, le cadmium forme avec l'oxygène un composé relativement stable ( $CdO_2$ ). Les essais conduits par Hofmann et Spino [1981] semblent soutenir cette hypothèse (le cadmium utilisé avait une forte teneur en oxygène de 2,7 %).

Pour Sharkawy et al. [1984], la comparaison de tests effectués en iode vapeur et en cadmium liquide (avec ou sans césium) montre deux domaines (fig. III-8) : pour des temps à rupture faibles (< 50 heures), la contrainte conduisant à la rupture est plus faible en milieu cadmié qu'en milieu iodé. Bairo et al. [1986] sont arrivés à des conclusions comparables. La fragilisation par le cadmium est donc aussi importante que la corrosion sous contrainte par l'iode, mais, selon les auteurs, elle peut être exclue comme cause de rupture des crayons combustibles, car il n'a jamais été observé de Cs et de Cd liquide en fonctionnement normal ou après rupture de crayons.

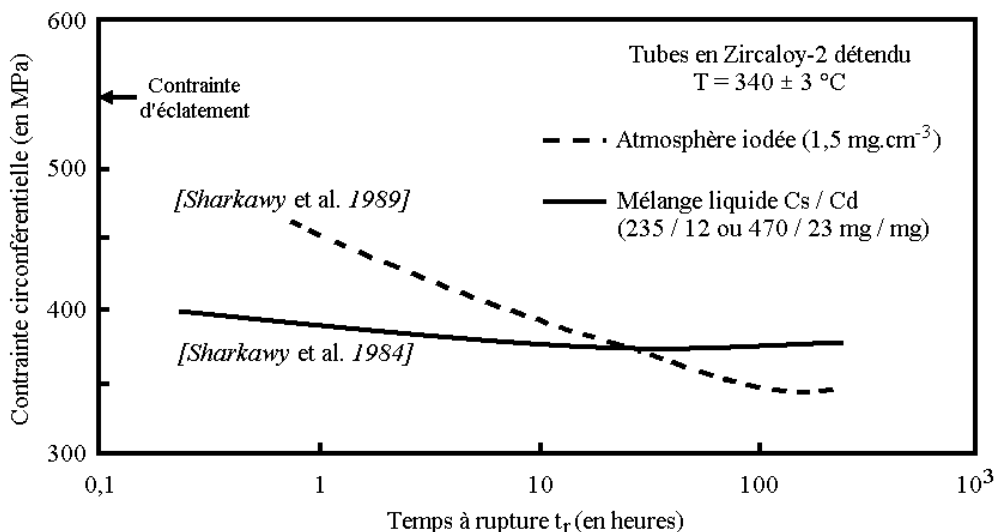


FIG. III-8. Comparaison des tests en milieux iodé et cadmié [Sharkawy et al. 1984, 1989].

L'autre argument avancé par certains auteurs pour exclure le cadmium comme agent corrosif expliquant les ruptures en réacteur est lié à la déformation obtenue à l'issue des tests, à savoir que celle-ci est beaucoup plus grande en présence de cadmium liquide qu'en milieu iodé. La déformation plastique est plus importante et incompatible avec les faibles déformations associées aux ruptures de crayons combustibles. Par contre, pour Shann et Olander [1983], c'est un concurrent important de l'iode pour expliquer les ruptures en réacteur. Davies *et al.* [1977] étaient arrivés à la même conclusion, car ils avaient observé la présence de cadmium sur la face interne des gaines au niveau des interpastilles. Malgré le fait que le cadmium n'ait pas été étudié en réacteur, comme l'iode (utilisation de crayons « dopés »), les chercheurs de General Electric, dont Davies, ont toujours effectué, par la suite, leurs tests en milieu agressif contenant de l'iode ou du cadmium [Tomalin *et al.* 1979]. Ceci dans le but, en particulier, de valider au laboratoire les remèdes à la corrosion sous contrainte (barrières).

Nous pouvons constater que le cadmium a été surtout étudié sous forme liquide, associé ou non à du césium. Cependant, nous ne savons pas sous quelle forme est présent le cadmium en réacteur, si ce dernier est bien présent avec l'iode dans le jeu, comme l'ont observé Davies *et al.* [1977] et si sa cinétique de relâchement hors du combustible est comparable à celle de l'iode.

### 2.2.3 Tellure

Lors des analyses spectrogammamétriques conduites à Vallecitos [Rosenbaum *et al.* 1966 a], des concentrations importantes de tellure avaient été observées dans le domaine de fissuration (comme pour l'iode). Les travaux de Hofmann et Spino [1981, 1982, 1983, 1984] indiquent que la corrosion sous contrainte par des composés du tellure (Te, CsTe, ...) n'est pas possible au-dessus de 500 °C. On peut donc penser qu'il en sera de même dans le domaine de température vu par la gaine en réacteur, bien que l'extrapolation soit difficile. De plus, l'étude en réacteur sur des crayons « dopés » en tellure [Davies *et al.* 1977] a montré qu'aucune attaque de la gaine ne s'était produite (voir paragraphe II.3.).

Nous pouvons donc conclure, malgré le manque de données, que le tellure n'est pas candidat pour être un agent corrosif. Cependant, sa participation à la chimie complexe du jeu peut-elle avoir une influence sur la corrosion sous contrainte en réacteur par ses combinaisons avec d'autres espèces augmentant alors l'iode libre dans le jeu ? La question reste ouverte.

### 2.2.4 Conclusions

Il paraît raisonnable de considérer le cadmium comme un agent corrosif potentiel, dont l'action se superposerait à celle prépondérante de l'iode. L'impossibilité de distinguer les faciès de rupture par l'iode et le cadmium, tant en réacteur (paragraphe II.3. [Davies *et al.* 1977]) qu'en laboratoire, indique que le processus d'attaque des alliages de zirconium est identique pour ces deux espèces. Cependant, la cinétique de la corrosion par le cadmium ainsi que son adsorption semblent plus faibles que pour l'iode. Ceci pourrait expliquer les déformations à rupture plus grandes observées en milieu cadmié. Ne disposant pas de données pour quantifier ces différences, nous nous intéresserons uniquement à l'iode, sachant que la concentration en agents corrosifs serait plus grande si l'on incluait le cadmium.

Quant aux autres produits de fission, leur rôle comme agent corrosif semble exclu. Excepté le césium, du fait de son abondance, leur influence sur la corrosion sous contrainte sera considérée comme nulle.



### 2.3 INFLUENCE DE L'OXYGÈNE

Les alliages de zirconium sont avides d'oxygène, ils se recouvrent toujours d'un film protecteur de zircone de quelques nanomètres et ce quelle que soit la température considérée. Cette couche est un frein à la corrosion sous contrainte, car il est nécessaire qu'elle soit rompue pour que l'agent corrosif puisse accéder au métal, notamment pour l'amorçage des fissures. L'influence de l'oxygène n'est pas à négliger, car il est très difficile de l'éliminer de l'environnement expérimental, même en effectuant un vide poussé.

La présence d'oxygène empêcherait la corrosion sous contrainte, car il s'engagerait une compétition entre la repassivation du matériau (le métal mis à nu se recouvre alors d'un film protecteur) et l'adsorption de l'iode sur les surfaces nouvellement mises à nu. Ainsi, dans le cas d'alliages de zirconium non irradiés et non oxydés, le mode opératoire a une influence sur les résultats. En effet, lorsque le milieu est clos, l'oxygène présent initialement va réagir rapidement avec le Zircaloy durant la montée en température et l'étape d'amorçage, à condition que la pression partielle en oxygène soit peu élevée [Lunde 1980].

Une [1979] a mis en évidence l'effet de la pression partielle en oxygène (et de la vapeur d'eau) ; lorsque cette dernière augmente, la sensibilité à la corrosion sous contrainte diminue, comme nous pouvons le constater sur les figures III-9 et III-10.

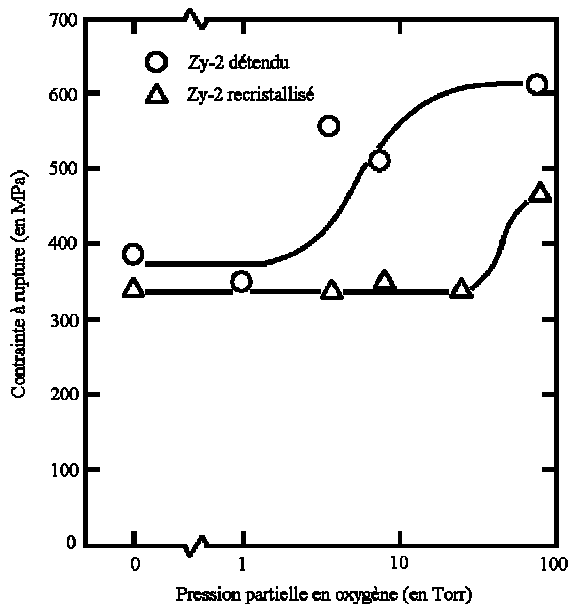


FIG. III-9. Influence de la pression partielle en oxygène sur la contrainte à rupture du Zircaloy-2 [Une 1979].

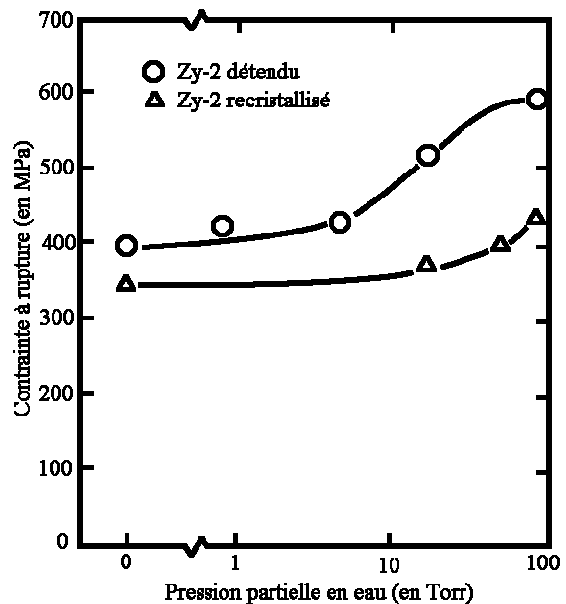


FIG. III-10. Influence de la pression partielle en vapeur d'eau sur la contrainte à rupture du Zircaloy-2 [Une 1979].

Ces travaux de Une [1979] mettent en évidence une pression partielle critique, au-dessus de laquelle la sensibilité à la corrosion sous contrainte est fortement diminuée. Ces essais sont des essais de traction à vitesse imposée sous débit constant en iode et en oxygène. Cette pression partielle critique apparaît donc comme la pression minimale en oxygène inhibant l'attaque de l'iode. En dessous de cette pression, l'oxygène disponible ne suffirait pas à repasser toutes les surfaces mises à nu, en supposant que la réaction  $\text{Zr-O}$  soit plus rapide que l'adsorption de l'iode (hypothèse raisonnable compte tenu de la forte affinité du zirconium pour l'oxygène). Toutefois, les problèmes posés par l'oxygène « libre » n'existent pas en réacteur et ne doivent être pris en compte que lors des essais en laboratoires car, dans le jeu d'un crayon combustible, la pression partielle d'oxygène qui a été calculée est infime. En réacteur, une couche irrégulière de zircone d'épaisseur variable se forme sur la face interne de la gaine. Elle résulte du contact entre la pastille et la gaine, l'oxygène diffusant du combustible vers la gaine.

*Quelle est donc l'influence d'une couche de zircon ?*

Lunde *et al.* [1980] ont montré que, lors d'essais de pressurisation interne avec du Zircaloy oxydé, l'oxygène présent dans le milieu clos avait une influence sur les résultats, alors que ce n'était pas le cas pour du Zircaloy non oxydé. Dans le cas des tubes non oxydés, l'oxygène réagirait avec l'alliage au début de l'essai, alors qu'en présence d'une couche de zircon, l'oxygène résiduel ne réagirait pas tant que le métal ne serait pas mis à nu suite la rupture de la couche de  $\text{ZrO}_2$ . Les travaux conduits par Sharkawy *et al.* [1989] montrent que la présence d'une couche de zircon n'est pas une barrière à l'action de l'iode. En effet, certains tubes utilisés lors de ces essais de pressurisation interne sur matériau oxydé furent d'abord soumis à l'action de l'iode durant 24 ou 48 heures, couplée ou non avec l'action d'une contrainte circonférentielle inférieure à la contrainte limite, contrainte en dessous de laquelle la corrosion sous contrainte ne se déclencherait pas. Ces tubes subissent ensuite le test classique de pressurisation interne. Les résultats obtenus sont reportés sur la figure III-11.

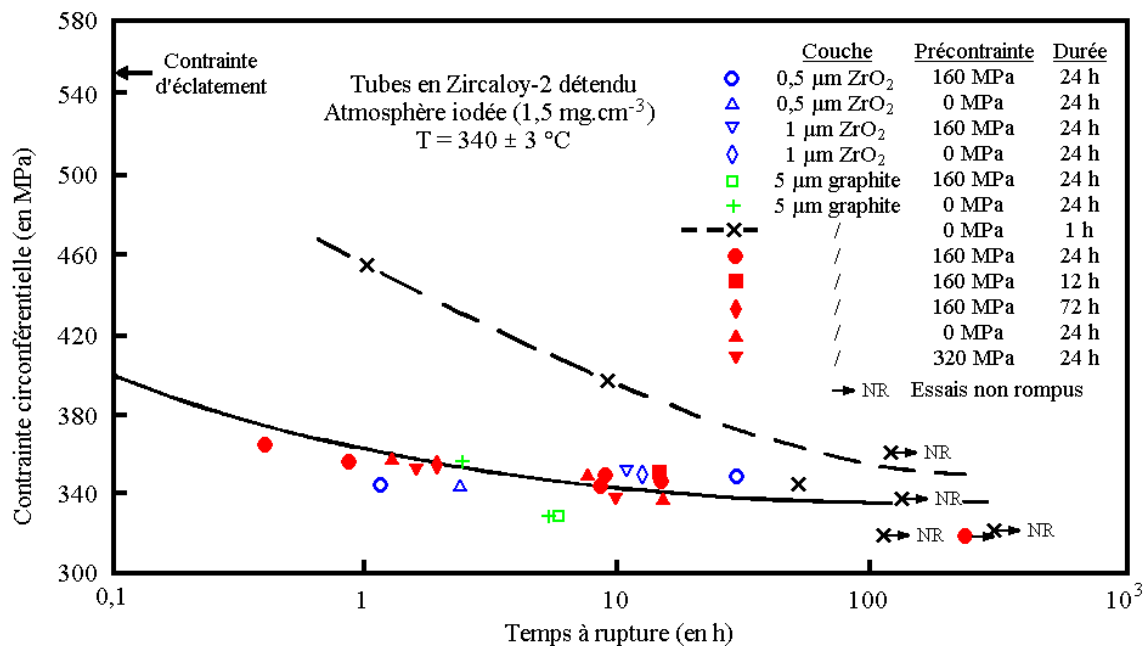


FIG. III-11. Influence d'une précontrainte et d'une couche protectrice (zircon ou graphite) [Sharkawy *et al.* 1989].

Ces essais montrent que l'iode agit sur le Zircaloy même en présence d'une couche de zircon. L'iode pourrait donc attaquer des couches de zircon de quelques micromètres d'épaisseur, mais cette action serait lente. La contrainte, même faible, assiste cette action suivant des mécanismes qui restent à établir. La formation de composés  $\text{Zr-I-O}$  par réaction de l'iode et de la zircon a été observée par Jacques [1994], l'attaque par l'iode vapeur pouvant, en certains endroits, conduire à une desquamation de la couche de zircon. Sidky [1998] rapporte l'observation de composés  $\text{Zr-I-O}$  sur des gaines rompues en réacteur. Ces composés étaient difficiles à ôter, même par attaque chimique, semblant indiquer une forte interaction gaine-iode-zircon.

Les fissures formées dans la couche de zircon sous l'effet du chargement mécanique pourraient-elles constituer des sites préférentiels facilitant l'accès de l'iode au métal ? Aucun travail n'a été publié à ce jour.

Une couche de zircon ne semble donc pas une barrière à l'attaque chimique de l'iode. Cette couche est très irrégulière en réacteur. Son rôle dans la corrosion sous contrainte est donc minime, et, comme nous le verrons au paragraphe 3, il peut être intégré dans la phase d'amorçage des fissures. Par la suite, nous négligerons la présence de cette couche d'oxyde en réacteur.

## 2.4 CONCLUSIONS SUR L'INFLUENCE DE L'ENVIRONNEMENT

Nous avons pu voir au cours de ce paragraphe que le contrôle draconien de l'environnement chimique lors des expériences en laboratoire est une condition indispensable pour permettre l'étude de la corrosion sous contrainte. Les essais réalisés dans les divers laboratoires conduisent à des résultats analogues, mais les valeurs expérimentales exploitables peuvent parfois diverger d'un laboratoire à un autre (voir par exemple les figures 10 et 11 de la référence [Sharkawy et al. 1989]). Lunde *et al.* [1980] exprimaient déjà l'importance des conditions expérimentales et la nécessité d'un essai normalisé. La synthèse de Une [1984] des données disponibles sur la corrosion sous contrainte confirme cet état de fait, notamment lorsque les effets de l'irradiation sont comparés entre les essais de différents laboratoires.

## 3 AMORÇAGE DES FISSURES

Dans ce paragraphe, nous allons étudier l'amorçage des fissures de corrosion sous contrainte, phase qui, selon certains auteurs, constitue la phase prédominante. Elle reste cependant encore mal connue.

Les premiers modèles de corrosion sous contrainte supposaient que les fissures ne s'amorçaient et se développaient que si la contrainte circonférentielle dépassait une contrainte limite. Cependant, les travaux de Sharkawy *et al.* [1989] (fig. III-11 et III-12) montrent que, si l'on applique avant l'essai une contrainte inférieure à cette contrainte limite en présence d'iode, les temps à rupture obtenus sont diminués. Ce résultat contredit l'hypothèse suivant laquelle seule la contrainte pilote l'amorçage des fissures.

Les travaux de Coffin [1979], Peehs *et al.* [1983], Jacques [1994], Bibilashvili *et al.* [1996 b] et Fregonese [1997] montrent que les fissures s'amorcent si la déformation plastique locale (mesurée après essai) dépasse une déformation seuil. L'étude de la densité de fissures montre que plus la déformation plastique locale est importante, plus le nombre de fissures est important. Par exemple, Bibilashvili *et al.* [1996 b] ont corrélé la densité de sites d'amorçage  $\mu_f(\epsilon)$  à la déformation suivant une loi puissance :  $\mu_f(\epsilon) = A.(\epsilon - \epsilon_d)^n$ , si  $\epsilon \geq \epsilon_d$ , et 0 sinon. Les travaux de Jones et Cubicciotti [1978], qualitatifs, effectués sur des tubes en pressurisation sous iode vapeur, montraient déjà que des fissures de corrosion sous contrainte s'amorçaient dans une zone déformée localement à l'aide d'un poinçon. Peehs *et al.* [1983] ont montré que la distribution de la taille des fissures suit une loi identique tout au long de l'essai (de pressurisation interne), la valeur moyenne augmentant avec le temps et la déformation, la dispersion de la distribution restant constante. Cependant, expérimentalement, il est extrêmement difficile d'éviter la présence d'une couche d'oxyde. On peut donc se poser la question de savoir si l'effet de la déformation est intrinsèque aux mécanismes de CSC étudié ou s'il résulte d'un couplage avec l'endommagement de la couche d'oxyde.

Nous avons vu au paragraphe précédent que l'attaque intergranulaire des alliages de zirconium était possible dans un milieu iodé pour des éprouvettes non contraintes [Jacques 1994], éprouvettes ayant été ou non écrouies. Mais cette attaque se limite en surface et la profondeur de ces sites est inférieure à la taille du grain de l'alliage attaqué.

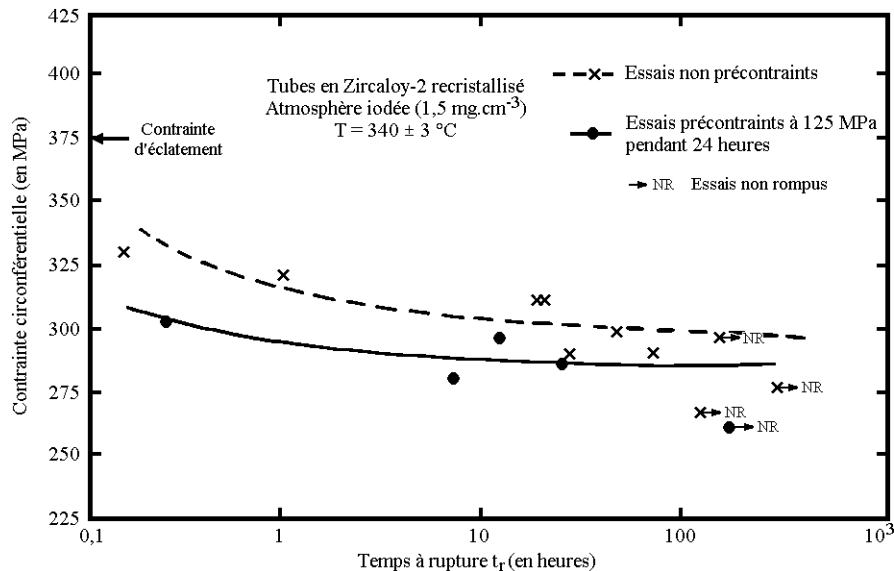


FIG. III-12. Influence d'une précontrainte appliquée durant 24 heures [Sharkawy et al. 1989].

### Quels sont donc les paramètres influençant l'amorçage ?

La condition de franchissement d'une déformation seuil est une condition nécessaire, mais non suffisante pour que les défauts amorcés le long des joints de grain ou des points triples puissent ensuite se développer et devenir des défauts importants. Ce seuil de déformation (évalué à 0,4 % de déformation totale [Verhaeghe 1997]) correspond à la déformation nécessaire pour rompre mécaniquement la couche protectrice de zircone.

L'étude cristallographique de l'amorçage des fissures menée par Kubo et al. [1985 a] a montré que la contrainte assistait cet amorçage. Tous les défauts se développant sont ceux orientés perpendiculairement à la contrainte appliquée. Les travaux de Jacques [1994] ont quantifié ces résultats. Il a également montré que l'incompatibilité de déformation, ainsi que la différence d'orientation cristallographique entre grains voisins sont des paramètres du second ordre, ce qui va à l'encontre des travaux de Kubo et al. [1985 a].

La contrainte joue un rôle sur le développement de ces défauts. En sollicitant plus les joints de grains orientés perpendiculairement à la contrainte appliquée, celle-ci permet à l'iode d'accéder plus facilement en profondeur. Selon Bibilashvili et al. [1996 b], seuls les défauts soumis à une contrainte locale supérieure à une contrainte limite, définie par des essais de pressurisation [Bibilashvili et al. 1995 et 1996 a], sont susceptibles de se développer le long d'un ou plusieurs joints de grain, en accord avec les observations de Jones et Cubicciotti [1978].

### Quel est le rôle des éléments d'alliage des Zircaloy ?

Les travaux de Jones et Cubicciotti [1978] indiquaient que les fissures s'amorçaient toujours sur des précipités (phase de Laves) du Zircaloy. Ces résultats ont été confirmés à l'époque par d'autres chercheurs travaillant également pour l'EPRI [Mattas et al. 1979]. Par la suite, le rôle des précipités comme sites d'amorçage a été démenti par Haddad et Cox [1986], Kubo [1985 b] et, plus récemment, par Jacques [1994] et Fregonese [1997].

Les précipités intragranulaires ne joueraient aucun rôle direct sur l'amorçage des fissures [Kubo 1985 b]. Les précipités intergranulaires ne constitueraient également pas des sites préférentiels pour l'amorçage. Leur influence apparaîtrait lorsque ces derniers seraient présents dans les joints de grains favorablement orientés, ces sites d'amorçage se développeraient plus, du fait du fer présent dans ces précipités, le fer étant connu pour promouvoir la corrosion sous contrainte [Wood 1972/1973]. L'augmentation de la concentration en fer de l'alliage accroîtrait le nombre de précipités tant intragranulaires, que intergranulaires, et donc la probabilité de présence de ces

précipités dans les joints favorablement orientés et, par la suite, la sensibilité à la corrosion sous contrainte, comme l'ont observé Kubo *et al.* [1985 b].

*Quels sont les autres paramètres susceptibles d'influencer cette phase d'amorçage ?*

La déformation plastique joue un rôle prépondérant sur l'amorçage. Un accroissement de la température, dans le domaine de températures compris entre 300 et 488 °C, augmente la plasticité du métal et favorise donc l'émergence des bandes de glissement, facilitant ainsi la rupture du film passif et donc l'amorçage des fissures [Coffin 1979, Fregonese 1997]. L'irradiation crée dans la matière des défauts, qui ont pour conséquence de durcir le matériau irradié, ce durcissement pouvant engendrer une localisation de la déformation. La zone de striction associée à cette localisation devient alors une zone privilégiée pour l'amorçage des fissures [Fregonese 1997].

#### *Conclusions partielles*

L'amorçage se produit lorsqu'une déformation minimale est atteinte, déformation correspondant à la rupture mécanique du film passif. Lors d'un transitoire de puissance, la poussée du combustible sur la gaine, du fait de la fragmentation de la pastille, crée en face interne de la gaine, en vis-à-vis des fissures du combustible, des zones où la déformation locale peut être importante (voir fig. I-9 a et I-9 b). Ces zones deviennent alors des sites préférentiels d'amorçage des fissures de corrosion sous contrainte, en accord avec les observations des expériences conduites en réacteur.

## **4 DÉVELOPPEMENT ET PROPAGATION D'UNE FISSURE DE CORROSION SOUS CONTRAINTE**

Une fois la fissure amorcée suivant le schéma décrit au paragraphe précédent, elle va continuer à se propager le long des joints de grain de l'alliage de zirconium : c'est la phase de propagation intergranulaire de la fissuration par corrosion sous contrainte. Lorsque certaines conditions sont atteintes, la fissure continue sa propagation mais de manière transgranulaire (plans de clivage associés à des zones de fluting). La fissure va continuer à croître pour conduire à la rupture ductile du ligament restant.

Pour beaucoup d'auteurs, la phase intergranulaire ne peut être décrite par la mécanique de la rupture, alors que la phase transgranulaire peut l'être, mais ce schéma n'est pas suivi par tous les auteurs. En particulier, Videm et Lunde [1979], Norring *et al.* [1982] ne considèrent qu'une phase de propagation de la fissure, décrite par la mécanique linéaire de la rupture. Cette phase regroupe les étapes intergranulaire (« amorçage ») et transgranulaire (« propagation »).

Videm et Lunde [1979] constatent que les deux modes de développement de la fissure peuvent être décrits par la même loi de vitesse en fonction du facteur d'intensité des contraintes  $K_I$ , à savoir  $da/dt = C.K_I^n$ ,  $a$  profondeur de la fissure, la constante  $C$  et l'exposant  $n$  étant déterminés à partir des résultats expérimentaux (fig. III-13). L'observation des faciès de rupture permet de mettre en évidence trois domaines de vitesses. Pour les faibles vitesses de propagation ( $< 10^{-8}$  m.s<sup>-1</sup>), ce qui correspond à des valeurs de  $K_I$  inférieures à 7 MPa.m<sup>1/2</sup>, la propagation est purement intergranulaire. Ensuite, apparaît une zone de transition où les faciès de rupture sont un mélange transgranulaire et intergranulaire ( $7 < K_I < 8,5$  MPa.m<sup>1/2</sup>). Au-delà, la rupture est essentiellement transgranulaire.

Les travaux de Norring *et al.* [1982] montrent également que la mécanique linéaire de la rupture peut décrire la propagation de la fissure. Par contre, le lissage des résultats indique une transition ( $K_I = 8$  MPa.m<sup>1/2</sup>) pour la vitesse de propagation correspondant au changement de mode

(fig. III-14). Il est à noter que le lissage des points expérimentaux ( $da/dt = f(K_I)$  ou  $K_I = f(da/dt)$ ) retenu influence les valeurs des constantes  $C$  et  $n$  de la loi (droite en pointillés sur la figure III-14 b). Ces travaux montrent également que la taille de grain (entre 4 et 10  $\mu\text{m}$ ) n'a pas d'influence sur les vitesses obtenues.

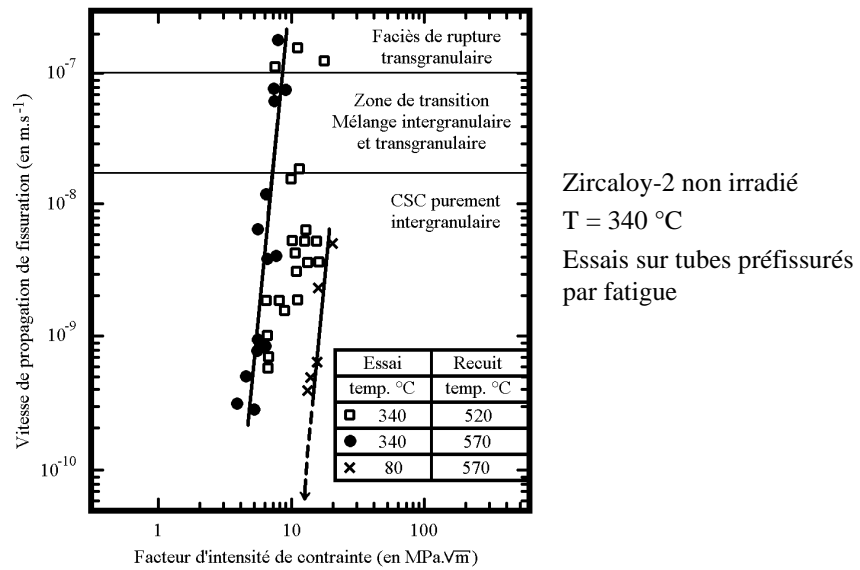
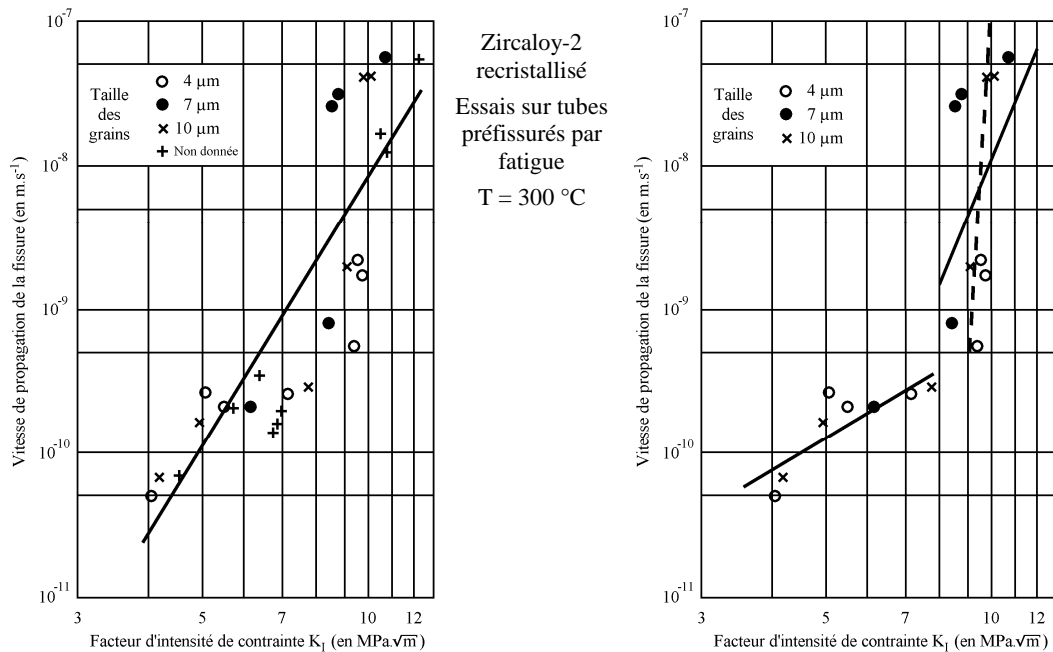


FIG. III-13. Vitesse de propagation d'une fissure de corrosion sous contrainte [Videm et al. 1979].



Les tailles de grain ont été obtenues par recristallisation pendant 15 minutes à différentes températures supérieures à 600 °C.

FIG. III-14. Vitesse de propagation d'une fissure de CSC en fonction de  $K_I$  [Norrington et al. 1982].

#### Quels sont les paramètres influençant la phase intergranulaire ?

La phase intergranulaire est la poursuite de la phase d'amorçage. Du fait que l'adsorption n'agit que sur une faible distance, la plasticité assisterait le développement intergranulaire de la fissure [Fregonese 1997]. Des traces de plasticité ont été observées sur les faces des grains en vis-à-vis de la fissuration intergranulaire [Verhaeghe 1997]. Le rôle de la contrainte devient important, car les fissures intergranulaires atteignant des profondeurs de quelques grains (effets de volume), la contrainte permet d'ouvrir ces fissures et ainsi d'autoriser l'accès de l'iode en fond de fissure.

*Quelles sont les conditions du passage de la phase de développement intergranulaire à la propagation transgranulaire ?*

Les conditions locales en pointe de fissure sont à l'origine du changement de mode de propagation. Il est conditionné par le franchissement d'un facteur d'intensité des contraintes critique  $K_{ICSC}$  ou d'une contrainte critique en pointe de fissure [Cox 1990 b].

La phase transgranulaire est caractérisée par les plans de quasi-clivage sur le plan basal de la maille hexagonale. Le « fluting » observé correspond à la déchirure ductile le long des plans prismatiques de cette maille. Roberts *et al.* [1979] et Smith *et al.* [1979] pensaient qu'en pointe de fissure, les grains orientés convenablement rompaient de manière fragile (quasi-clivage), créant localement une zone de décohésion partielle où la contrainte ne s'appliquait plus que sur les autres grains, conduisant à leur rupture par déchirure. Sur la figure III-15, ce schéma correspondrait au clivage des plans C1 et C2, puis de la déchirure de la zone F. Mais, ce schéma semble erroné, comme le proposent Leech et Garlick [1984]. La fissure se propagerait en rompant successivement les grains rencontrés (zones C1 puis F puis C2).

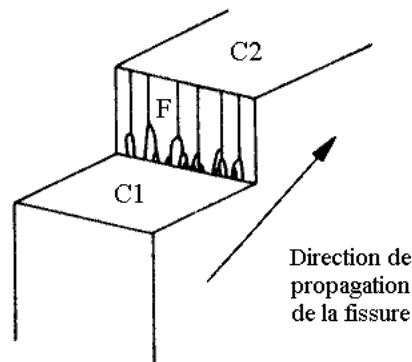


FIG. III-15. Schéma de propagation transgranulaire d'une fissure [Leech *et al.* 1984].

*Quels sont les paramètres influençant la propagation transgranulaire ?*

Contrairement à la phase intergranulaire, aucune influence de la plasticité n'a pu être mise en évidence sur la propagation transgranulaire [Rouillon *et al.* 1997]. Ces auteurs ont également observé que la vitesse de propagation dans le domaine de température compris entre 350 et 488 °C est constante, environ  $2 \mu\text{m.s}^{-1}$  pour du Zircaloy-4 détendu non irradié.

L'effet de texture, mis en évidence par Peehs *et al.* [1979], puis confirmé par de multiples études [Schuster *et al.* 1992], montre que plus cette dernière est tangentielle, plus la sensibilité à la corrosion sous contrainte est grande (fig. III-16).

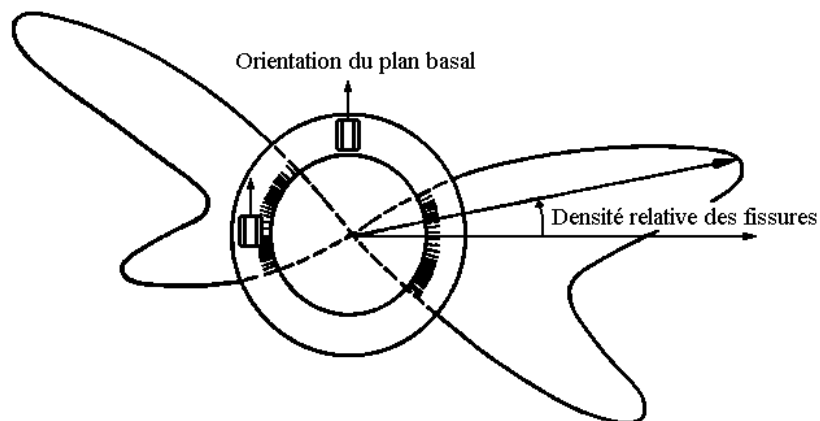


FIG. III-16. Distribution angulaire de fissures de corrosion sous contrainte en fonction de la texture (tube non « classique ») [Peehs *et al.* 1979].

L'influence de la texture s'explique très bien par les travaux de Hwang *et al.* [1989] sur la fragilisation par l'iode des liaisons Zr–Zr, travaux restant toutefois à valider par des calculs *ab initio*. Le plan basal et les plans pyramidaux sont les plans les plus fragilisés par l'adsorption de l'iode. Lorsque la texture est radiale, les conditions déclenchant la propagation transgranulaire sont plus difficiles à atteindre, la phase intergranulaire est, dans ce cas, plus importante.

#### *Un mécanisme unique pour décrire les phases intergranulaire et transgranulaire ?*

Comme pour l'amorçage des fissures, l'adsorption de l'iode semble être le mécanisme qui régit les stades intergranulaire [Williford 1985] et transgranulaire de la propagation. Les conditions mécaniques seraient seules à l'origine des différences fractographiques entre ces deux stades. Dans le cas de la phase transgranulaire, la cinétique d'adsorption de l'iode expliquerait pourquoi les vitesses de propagation sont si faibles (environ  $2 \mu\text{m.s}^{-1}$  [Rouillon *et al.* 1997]), en comparaison des vitesses de propagation d'un phénomène de clivage pur.

Les travaux de Wood *et al.* [1975] (essais d'expansion de mandrin) et Rouillon *et al.* [1997] (essais de pressurisation interne) montrent que le comportement en déformation de l'éprouvette lors de ces essais est le même en milieu iodé qu'en milieu inerte, à savoir un comportement en fluage (les courbes traçant la contrainte ou la force appliquée en fonction de la vitesse de déformation moyenne sont identiques pour les deux types de milieu). Le fluage de l'alliage de zirconium assisterait donc la corrosion sous contrainte. Seules des conditions locales différentes sont à l'origine des faciès pouvant être observés. Williford [1984 et 1985] s'est basé sur cette hypothèse pour construire son modèle de corrosion sous contrainte.

Ryu *et al.* [1988] ont cependant observé une influence de la concentration en iode sur les vitesses de fluage primaire et secondaire avec un effet de saturation pour les concentrations élevées en iode. La méthodologie utilisée par Ryu *et al.* [1988] pour tracer ces courbes de fluage en présence d'iode pourrait être à l'origine des résultats obtenus. En effet, ces essais de pressurisation interne sont conduits sur des tubes bouchés, contenant initialement la quantité d'iode souhaitée et la pression d'argon nécessaire pour engendrer l'état de contrainte désiré à la température de l'essai (340 °C). À différents instants, la mesure de la variation de diamètre est effectuée manuellement à la température ambiante, suite au refroidissement de l'échantillon, qui est ensuite réchauffé à la température de l'essai jusqu'à la prochaine mesure. L'échantillon voit donc au cours de l'essai un cyclage en température et en pression, dont les effets sur l'environnement chimique sont difficilement évaluables et *a priori* non négligeables (l'iode peut agir lors des phases de baisse et de montée en température).

Il apparaît que les phases intergranulaire et transgranulaire pourraient être régies par le même mécanisme chimique, l'adsorption de l'iode, et assistées par la déformation (visco)plastique du matériau, qui mettrait à nu le métal.

## 5 CONCLUSIONS

À l'issue de cette revue, il ressort que la fissuration par corrosion sous contrainte pourrait être décrite par l'association entre la mise à nu du métal par déformation plastique et l'adsorption chimique de l'iode en pointe de fissure. Mais quel pourrait donc être le paramètre mécanique qui gouverne le développement et la propagation de la fissure (en supposant qu'il y ait toujours assez d'iode en pointe de fissure) ?

L'existence d'une contrainte minimale de fissuration n'est pas clairement établie expérimentalement, puisque la valeur de cette contrainte est fonction de la durée maximale des essais (les durées requises sont incompatibles avec des études de laboratoire). La contrainte est un paramètre adapté pour interpréter les essais de corrosion sous contrainte à charge imposée,



sachant que la contrainte appliquée durant l'essai provoque, outre la déformation plastique due à la mise en charge, une déformation par fluage.

Les essais de traction lente, effectués à vitesse de déformation imposée, permettent d'obtenir des informations sur les rôles respectifs de la contrainte et de la vitesse de déformation. En effet, ces essais montrent que la fissuration ne se produit que lorsque la vitesse de déformation est inférieure à une valeur seuil (fig. III-6 et III-7). Au-dessus de cette valeur, la cinétique d'adsorption de l'iode serait plus lente que les mécanismes de plasticité.

L'influence de la vitesse de déformation tend à indiquer que ce paramètre mécanique joue un rôle important dans les mécanismes de fissuration par CSC des alliages de zirconium. Cependant, l'existence d'une corrélation absolue entre la résistance à la corrosion sous contrainte et la vitesse de déformation viscoplastique n'est pas démontrée. Ceci suggère également que ce n'est pas la vitesse de déformation macroscopique qui doit être prise en compte, mais la vitesse de déformation viscoplastique locale.

De nombreux auteurs ont montré que la sensibilité à la corrosion sous contrainte augmentait avec la triaxialité des contraintes [Fairman 1977, Une 1979, Nakatsuka et al. 1982 a et 1982 b, Choo et al. 1987]. Cet effet de la triaxialité pourrait s'expliquer également en terme de vitesse de déformation, et non pas en terme de diffusion de l'iode (à l'image de l'hydrogène qui diffuse dans le Zircaloy vers les zones fortement contraintes), comme le pensaient Choo *et al.* [1987]. Cependant, seule l'évaluation des champs mécaniques en pointe de fissure au cours de ces essais, dont le champ des vitesses de déformation, pourrait le montrer.

Le rôle des paramètres mécaniques sur les mécanismes de corrosion sous contrainte reste cependant une question ouverte. En effet, les travaux de Verhaeghe [1997] montrent que les différents modèles physiques de la littérature ne semblent pas s'appliquer la corrosion sous contrainte des alliages de zirconium (les signatures fractographiques de chacun des modèles n'ont pas été observées).

## CHAPITRE IV.

### MODÈLES MACROSCOPIQUES DE CORROSION SOUS CONTRAINTES DES ALLIAGES DE ZIRCONIUM

L'objectif de ce chapitre est de présenter les différents modèles macroscopiques de corrosion sous contrainte des alliages de zirconium disponibles dans la littérature, modèles pouvant être intégrés dans des codes de calculs thermomécaniques de crayon combustible.

#### 1 QUELQUES GÉNÉRALITÉS

Tous les modèles de corrosion sous contrainte disponibles dans la littérature sont de nature phénoménologique et calés sur des expériences de pressurisation interne menées sur des tubes de gainage en alliages de zirconium. En effet, ces essais sont considérés comme les mieux contrôlés et représentatifs de la situation d'interaction pastille-gaine. L'état de contrainte global dans ces tubes minces est connu analytiquement ; de plus, ce sont des essais relativement aisés à effectuer.

Les essais d'expansion de mandrin [Wood 1975, Coffin 1979, Tomalin et al. 1979] sont, en revanche, plus représentatifs, mais leur dépouillement nécessite un calcul complémentaire pour déterminer les contraintes dans la gaine, car l'état mécanique du système n'est pas simple. Ils n'ont été utilisés qu'à titre purement comparatif (comparaison entre milieux inerte et corrosif), comme le sont également les essais de traction sur anneaux.

Afin de déterminer les vitesses de propagation intergranulaire et transgranulaire, ces essais sont conduits soit sur des tubes sains, soit sur des tubes présentant une préfissure. Cette préfissure est créée soit mécaniquement par usinage (essais de l'EPRI [Jones et al. 1978, 1979 et 1980]), soit par fatigue (essais du CEA Grenoble [Lemaignan 1984]).

Lors d'essais sur tubes préfissurés, la fissure de corrosion sous contrainte se propage uniquement de manière transgranulaire, la rupture intervenant par déchirement ductile. Ces essais permettent donc de déterminer la loi de vitesse transgranulaire  $v_{TG}$ . Elle est toujours écrite sous la forme :  $v_{TG} = f(K_I)$  si  $K_I > K_{I,CSC}$ , le facteur seuil  $K_{I,CSC}$  d'intensité des contraintes étant évalué par extrapolation de ces mêmes essais. Les essais sur tubes sains, pour lesquels la fissure se propage intergranulairement puis transgranulairement, servent à déterminer, à l'aide d'un traitement mathématique, soit la vitesse de propagation intergranulaire  $v_{IG}$  [Delette 1994], soit la durée  $t_{IG}$  de cette phase non décrite par la mécanique de la rupture [Videm et al. 1979] (phase d'amorçage). Cette étape est régie par des lois purement phénoménologiques et n'intègre pas les mêmes ingrédients suivant les auteurs (au contraire de la propagation transgranulaire).

La période d'incubation est soit intégrée dans la phase d'amorçage, soit négligée. La rupture ductile, sauf exception, est considérée comme instantanée. La corrosion sous contrainte est provoquée par le dépassement d'une contrainte limite, dont la définition varie suivant les auteurs. En général, il s'agit de la contrainte en dessous de laquelle la rupture n'a pas été observée après une durée donnée (100 heures par exemple). Båro et al. [Båro et al. 1986, Atrens et al. 1984, Dannhäuser et al. 1984] utilisent une autre définition plus adaptée à leurs essais ; il s'agit de la valeur limite de la contrainte d'éclatement lorsque la vitesse de montée en pression tend vers 0 (fig. IV-1). La définition d'une contrainte limite apparaît donc comme arbitraire. Nous avons déjà mis ce point en avant au chapitre III, paragraphe 3. (fig. III-12).

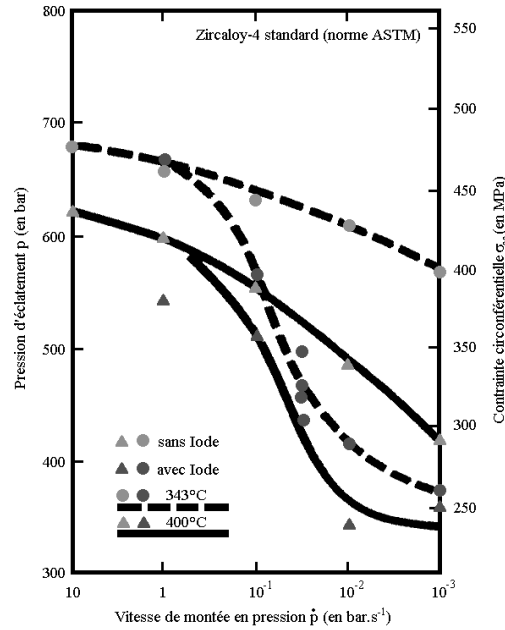


FIG. IV-1. Définition de la contrainte limite selon Bairo et al. [1986].

Parmi les modèles qui suivent les quelques principes énoncés ci-dessus, nous allons présenter le modèle de Delette [1994], EPRI [Miller et al. 1981 et 1988] et ABB [Jenkvis 1995]. D'autres modèles, proches de celui de Delette, furent développés [Videm et al. 1979, Mattas et al. 1979], mais nous ne les exposerons pas ici.

## 2 PRÉSENTATION DE QUELQUES MODÈLES

### 2.1 MODÈLE DE SCHUSTER-DELETTE (CEA GRENOBLE) [1994]

Les trois paramètres mécaniques qui caractérisent ce modèle sont les suivants :

- la contrainte limite  $\Sigma_{lim}$ , contrainte à dépasser pour déclencher la corrosion sous contrainte et la propagation intergranulaire ;
- le facteur d'intensité des contraintes critique  $K_{I\text{CSC}}$ , son franchissement déclenchant la propagation transgranulaire ;
- le paramètre D, caractérisant la vitesse de propagation transgranulaire.

Toutes ces grandeurs ont été identifiées sur des essais de pressurisation interne conduits sur matériau neuf ou irradié à différentes fluences.

#### Seuil de déclenchement de la corrosion sous contrainte

La contrainte circonférentielle  $\Sigma_{\theta\theta}$  doit franchir la contrainte limite  $\Sigma_{lim}$ , dépendant de la fluence  $\phi$  et de la température T. L'évolution de  $\Sigma_{lim}$  retenue est la suivante ( $\phi$  en neutrons.m<sup>-2</sup>, T en Kelvins,  $\Sigma_{lim}$  en MPa) :

$$\Sigma_{lim} = [279 - 1,32(T - 623,15)] - [84 - 1,32(T - 623,15)] \left( \frac{\phi}{1,1 \cdot 10^{25}} \right) \quad \text{Pour } \phi \leq 1,1 \cdot 10^{25} \text{ neutrons.m}^{-2}$$

$$\Sigma_{lim} = 195 - 132 \left( \frac{\phi}{8 \cdot 10^{25}} \right) \quad \text{Pour } \phi \geq 1,1 \cdot 10^{25} \text{ neutrons.m}^{-2}$$

#### Loi de développement intergranulaire

La vitesse de développement intergranulaire n'étant pas accessible directement, la formulation suivante a été retenue :  $\frac{da}{dt} = \frac{\Omega}{a} (\Sigma_{\theta\theta} - \Sigma_{lim})$ , a longueur de la fissure intergranulaire et  $\Omega$  fonction

empirique des paramètres  $\Sigma_{lim}$  et de  $K_{I\text{CSC}}$ . Les auteurs ont supposé, lors de la détermination de cette fonction, qu'il existait une proportionnalité entre la contrainte limite  $\Sigma_{lim}$  et la limite d'élasticité. Cependant, l'effet de la fluence sur ces deux contraintes est opposé ( $\Sigma_{lim}$  diminue avec l'irradiation, alors que le matériau se durcit).

#### Transition intergranulaire/transgranulaire

Le facteur d'intensité des contraintes critique pour le Zircaloy-4 détendu (standard) suit la loi :

$$K_{I\text{CSC}} = 1,247 + 2,153 \cdot \exp(-\phi/10^{25}), K_{I\text{CSC}} \text{ en MPa.m}^{1/2} \text{ et } \phi \text{ en neutrons.m}^{-2}.$$

Ce facteur ne dépend pas de la température, résultat confirmé par la suite, par Rouillon *et al.* [1997], dans le domaine de températures [350, 488 °C] pour du matériau non irradié.

#### Loi de propagation transgranulaire

La loi de propagation recalée sur les essais est la suivante :

$$\frac{da}{dt} = C \left[ 1 + D(K_I - K_{I\text{CSC}}) \right], \text{ si } K_I > K_{I\text{CSC}} \text{ et } C = 10^{-10} \text{ m.s}^{-1} \text{ par convention.}$$

Le paramètre D (en  $(\text{MPa.m}^{1/2})^{-1}$ ) a pour expression (pour du Zircaloy-4 standard) :

$$D = 3,86 \cdot 10^{-3} \cdot [0,289 + 0,711 \cdot \exp(-\phi/10^{25})] \cdot \exp(8723/T), T \text{ en K, } \phi \text{ en neutrons.m}^{-2}.$$

Le facteur d'intensité des contraintes  $K_I$  est calculé par  $K_I = 0,89 \cdot \Sigma_{\theta\theta} \cdot (\pi a)^{1/2}$ .

#### Critère de rupture de la gaine

La rupture a lieu lorsque la longueur de la fissure  $a$  est égale à l'épaisseur de la gaine.

## 2.2 MODÈLE DE L'EPRI [MILLER ET AL. 1981 ET 1988]

Les fissures de corrosion sous contrainte étant axiales et se propageant radialement dans l'épaisseur, Miller *et al.* [1981 et 1988] ont développé pour l'EPRI un modèle unidimensionnel pour simuler leur propagation. L'utilisation d'un code par éléments finis a été écartée pour des raisons de facilité d'utilisation et de coûts de calculs.

#### Géométrie du modèle

L'épaisseur  $w$  de la gaine est découpée en  $n$  éléments ( $n = 50$ ) de longueur  $\Delta L_i$ .

On ne s'intéresse qu'aux valeurs locales de la déformation circonférentielle  $E_{\theta\theta}$ , de la contrainte circonférentielle  $\Sigma_{\theta\theta}$  et de la concentration en iode  $I$  au milieu de chaque élément repéré par la grandeur  $v_i = R_i - R_{moy}$  (fig. IV-2).

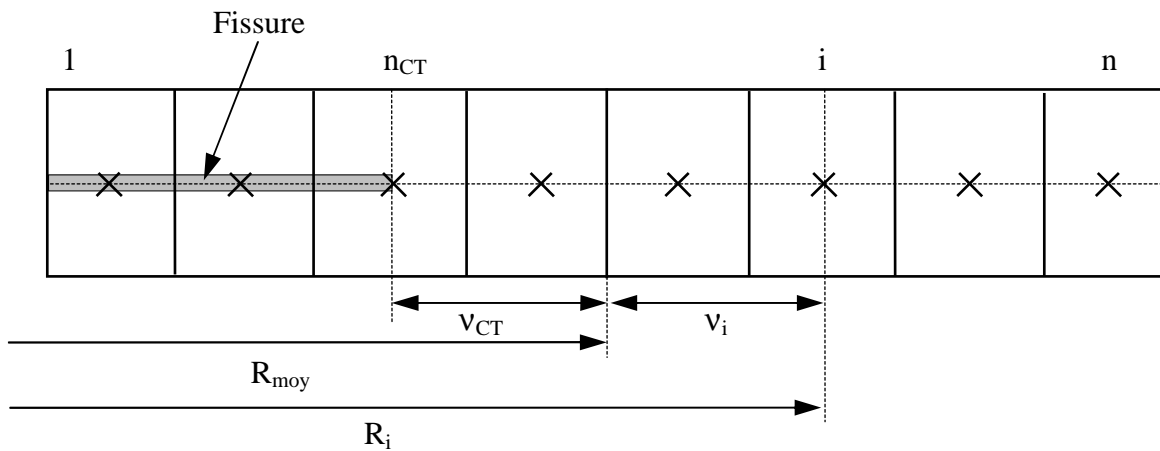


FIG. IV-2. Géométrie du modèle de l'EPRI.

*Profils de déformation et contrainte liés à la fissure*

Afin de tenir compte de la présence de la fissure et de son influence sur les champs de contrainte et de déformation dans le ligament, les profils de déformation et de contrainte sont postulés comme suit :

$$\varepsilon_i = A + B[\exp(-k_2 v_i) - 1] \quad (n \text{ équations})$$

$$\sigma_i = \sigma^u(\varepsilon_i) + 2\sigma_y [1 - \exp(-k_3 B)] \left( \frac{v_i - v_n}{v_{CT} - v_n} \right)^2 \quad (n \text{ équations})$$

$\varepsilon_i$ ,  $\sigma_i$  respectivement déformation et contrainte au milieu de l'élément noté  $i$ .

$\sigma^u(\varepsilon_i)$  contrainte donnée par la courbe de traction (essai uniaxé).

Le second terme intervenant dans l'équation de la contrainte est un terme qui permet de rendre compte de la triaxialité croissante des contraintes au fur et à mesure que la fissure se propage ( $B$  augmentant),  $\sigma_y$  est la limite d'élasticité du matériau. La forme du champ de déformation, ainsi que la valeur du paramètre  $k_2$ , ont été déterminées par lissage du champ de déformation issu d'un calcul par éléments finis d'un tube fissuré.

L'équilibre de la section s'écrit suivant :

$$w \cdot \sigma_{\text{moy}} = \sum_{i=n_{CT}}^n \sigma_i \Delta L_i \quad \text{et} \quad \sum_{i=n_{CT}}^n v_i \sigma_i \Delta L_i = 0 \quad (2 \text{ équations})$$

Nous avons donc  $(2n+2)$  inconnues  $\varepsilon_i$ ,  $\sigma_i$ ,  $A$  et  $B$  pour  $(2n+2)$  équations. Comme données d'entrée, un code de calcul d'assemblage donne, au cours du temps, les variations de la contrainte moyenne circonférentielle  $\sigma_{\text{moy}}$  ou du déplacement circonférentiel global de la section. La loi de comportement utilisée pour le matériau étant une loi élastoplastique bilinéaire, la résolution de ce système devient aisée [Miller et al. 1988].

*Concentration d'iode I au premier élément non rompu*

Le mécanisme important de la corrosion sous contrainte est l'attaque chimique de l'iode en fond de fissure. Le processus, retenu par les auteurs du modèle, qui limite l'adsorption de l'iode est sa diffusion de la face interne de la gaine vers la pointe de fissure.

La concentration en iode en fond de fissure (élément repéré par l'indice  $CT$  sur la figure IV-2) est régie par l'équation :

$$\frac{dI}{dt} = \frac{I_3}{w} \exp\left(-\frac{Q}{RT}\right) \left[ I_{\text{eff}} \exp\left(-\frac{k_5}{\varepsilon^{k_6}}\right) - I \right]$$

$\varepsilon$  est la déformation totale en pointe de fissure.  $I_{\text{eff}} = \min(I_2, 10^{-4} \text{ g.cm}^{-2})$  traduit un effet de saturation en iode, où  $I$  est la concentration d'iode à l'intérieur de la gaine.  $I_3$ ,  $Q$ ,  $k_5$  et  $k_6$  sont des constantes du modèle.

La grandeur mécanique gouvernant l'accès de l'iode en pointe de fissure est la déformation en ce point. En effet, plus la fissure est ouverte (déformation importante), plus l'iode est susceptible d'accéder en pointe de fissure, la température accélérant ce mécanisme.

*Critères locaux de propagation*

La concentration en iode en pointe de fissure est la grandeur choisie pour gouverner le mode de propagation de la fissure sous l'attaque chimique du Zircaloy par l'iode.

La propagation est intergranulaire, si la concentration  $I_{CT}$  atteint, pour des contraintes  $\sigma_{CT}$  en pointe de fissure, la valeur seuil  $I_{CT} = I_{IG} = 10^{-6} \text{ g.cm}^{-2}$ .

La propagation est transgranulaire si la concentration atteint une valeur seuil dépendant de la contrainte en fond de fissure :

$$I = I_{IG} \left( \frac{\sigma_{0,C+F}}{\sigma} \right)^4 \quad \text{si } \sigma \geq \sigma_{0,C+F}.$$

La contrainte  $\sigma_{0,C+F}$  est à relier au facteur d'intensité des contraintes  $K_{I\text{CSC}}$ , elle est fonction de la texture du matériau. La forme de l'équation retenue est à corrélérer avec la loi de propagation déterminée par Kreyns *et al.* [1976] :  $da/dt = C.K_I^4$ , si  $K_I \geq K_{I\text{CSC}}$ , C constante.

La rupture ductile de la gaine intervient lorsque la déformation en pointe de fissure  $\varepsilon_{CT}$  dépasse la déformation à rupture  $\varepsilon_R = \frac{1}{3} \varepsilon_R^u [1 + 2 \exp(-k_3 B)]$ , dépendant de la triaxialité engendrée par la propagation de la fissure,  $\varepsilon_R^u$  étant la déformation à rupture obtenue lors d'un essai uniaxial.

Lorsque les conditions de rupture intergranulaire ou transgranulaire sont atteintes en pointe de fissure, la déformation et la contrainte de l'élément associé sont mises à zéro, ainsi que la concentration en iode au milieu de l'élément suivant (tout l'iode arrivant en pointe de fissure est supposé réagir avec le Zircaloy et n'est alors plus disponible par la suite). L'état mécanique de la section est réactualisé, lorsque le chargement global est modifié (application à un transitoire de puissance, par exemple) et/ou lorsqu'un élément est rompu (propagation de la fissure).

#### *Distribution initiale de taille de défauts*

Afin d'expliquer la dispersion des résultats observés, d'une part, lors des expériences de pressurisation interne et, d'autre part, lors de transitoires de puissance conduits sur des crayons en réacteur expérimental (dans ce cas, la dispersion obtenue est plus importante qu'en laboratoire), Miller *et al.* [1981] ont introduit la présence possible d'un défaut initial. La taille de ce défaut est aléatoire, mais reste cependant inférieure au dixième de l'épaisseur de la gaine (taille maximale tolérée à l'issue de la fabrication de la gaine).

La loi de distribution de la taille de ces défauts, mesurée expérimentalement, est la suivante :

$$\phi(c_0) = 1 - \exp \left[ -k A_s (1/\sqrt{c_0})^p \right].$$

$\phi(c_0)$  est la probabilité qu'un défaut ait une taille initiale supérieure à  $c_0$ , les paramètres  $k$  et  $p$  sont obtenus par lissage des résultats expérimentaux.  $A_s$  est la surface concernée par l'attaque chimique de l'iode. Pour un assemblage combustible et une éprouvette de laboratoire, ces surfaces sont différentes. Ceci pourrait expliquer, selon les auteurs, que des ruptures soient observées en réacteur dans des conditions identiques à celles simulées lors d'expériences en laboratoire où la rupture n'est pas obtenue (un défaut initial plus grand en réacteur étant alors plus probable).

#### *Remarques*

L'EPRI a développé une formulation simplifiée de ce modèle [Miller *et al.* 1981 *et* 1988], qui consiste en l'écriture d'une formulation explicite de la vitesse de propagation de la fissure  $da/dt$  en fonction de la contrainte moyenne  $\sigma_{\text{moy}}$  et de la concentration  $I_2$  en iode en face interne (équation obtenue par lissage des résultats fournis par le modèle présenté dans ce paragraphe). La présence d'une barrière de zirconium (remède à la corrosion sous contrainte - voir chapitre II) peut être prise en compte avec ce modèle [Miller *et al.* 1988]. Ce modèle a été implanté dans des codes de calcul de crayon combustible [Yaung *et al.* 1985]. Il a été retenu par des chercheurs roumains [Ciocan *et al.* 1998], qui l'ont amélioré, en tenant compte, par exemple, de l'adsorption anisotrope de l'iode [Hwang *et al.* 1989] et de la plasticité en fond de fissure (modifiant la contrainte  $\sigma_{0,C+F}$  au cours de la propagation).

### 2.3 MODÈLE DE JENKVIST (ABB ATOM) [1995]

Ce modèle de corrosion sous contrainte a été développé par Jenkvist [1995]. Il a été intégré dans le code de calcul par éléments finis bidimensionnel utilisé par ABB Atom (Suède) pour modéliser le comportement du combustible [Massih et al. 1995].

La longueur de la fissure créée dans la gaine est notée  $a$ .

#### *Existence d'un défaut initial*

La propagation intergranulaire étant lente, Jenkvist considère, afin d'expliquer des temps à rupture très courts observés lors de transitoires de puissance, que la gaine présente un défaut initial, dont les dimensions sont telles que la propagation de ce défaut débute de manière transgranulaire ou ductile.

La profondeur initiale  $a_0$  de la fissure de corrosion sous contrainte suit une loi de distribution. La loi retenue par Jenkvist [1995] est celle utilisée par l'EPRI dans son modèle (voir le paragraphe précédent).

#### *Loi de propagation transgranulaire*

La propagation transgranulaire débute si le taux de restitution d'énergie  $J$  dépasse une valeur seuil, notée  $J_{CSC}$ . Rappelons que, dans le cadre de la mécanique linéaire de la rupture, le taux de restitution d'énergie  $J$  et le facteur d'intensité des contraintes  $K_I$  sont reliés par :

$$J = \frac{\kappa}{E} K_I^2 \quad \begin{array}{l} \kappa \text{ valant } 1 \text{ en contraintes planes et } 1-\nu^2 \text{ en déformations planes,} \\ \nu \text{ coefficient de Poisson du matériau et } E \text{ son module d'Young.} \end{array}$$

$J_{CSC}$  peut donc être relié au facteur  $K_{I_{CSC}}$ , déterminé expérimentalement. Ce paramètre dépend de la fluence et de la température.

Les expériences réalisées par Nagai *et al.* [1985] montraient qu'il était possible de décrire la propagation d'une fissure de corrosion sous contrainte à l'aide de ce paramètre  $J$ .

Jenkvist a intégré dans sa loi les effets de la concentration en iode sur la vitesse de propagation de la fissure, valeurs obtenues par Ryu *et al.* [1988], même si ces travaux sont sujets à discussion (voir paragraphe III.)

La loi de propagation transgranulaire utilisée par Jenkvist est la suivante :

$$\frac{da}{dt} = \begin{cases} 0 & \text{si } J < J_{CSC} \\ C \cdot f(I_2) \cdot \left( \frac{J}{J_{CSC}} \right)^N \exp\left( -\frac{Q}{RT} \right) & \text{si } J \geq J_{CSC} \end{cases}$$

$f(I_2)$  traduit l'effet de la concentration en iode (fig. IV-3),

$J_{CSC}$  fonction de la fluence et de la température  $T$  (loi non donnée),

$1,35 \leq N \leq 1,50$ , coefficient supposé identique pour tous les alliages de zirconium,

$Q$  énergie d'activation et  $C$  constante, fonctions du matériau de gainage,

$R$  constante des gaz parfaits.

#### *Loi de propagation ductile*

Contrairement aux autres modèles, Jenkvist considère que la rupture par déchirure ductile de la gaine n'est pas instantanée. Il tient compte, dans son modèle, du fait que la ténacité du matériau évolue avec la profondeur de la partie ductile de la fissure. On note  $a_d$  la longueur de la fissure s'étant propagée de manière ductile.

$J_R(a_d)$  est la courbe de ténacité du matériau (fig. IV-4). Cette courbe n'étant pas disponible dans la littérature ouverte pour du matériau irradié, son allure a été postulée. La température modifie la valeur  $J_{IC}$  ( $= J_R(a_d=0)$ ), mais pas l'allure de la courbe.

L'accroissement ductile  $\Delta a$  de la fissure durant un intervalle de temps  $\Delta t$  est donné par :

$$\begin{cases} \Delta a = 0 & \text{si } J(a) < J_R(a_d) \\ J_R(a_d + \Delta a) = J(a) & \text{sinon} \end{cases}, \text{ où } J(a) \text{ est le taux de restitution calculé.}$$

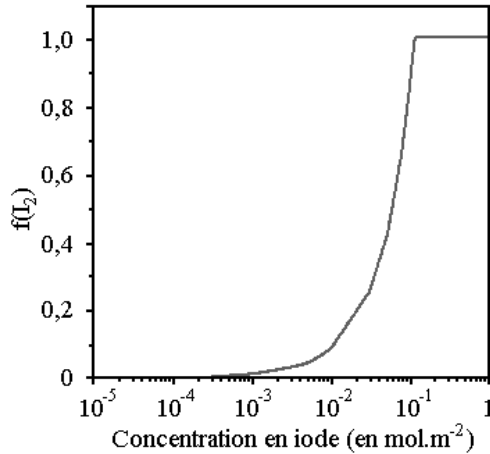
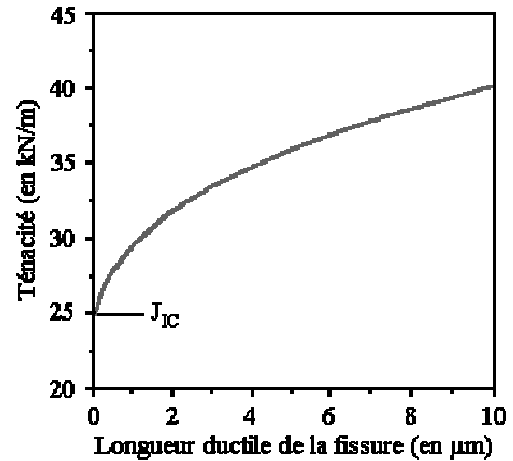


FIG. IV-3. Effet de la concentration en iode.

FIG. IV-4. Courbe de ténacité  $J_R(a_d)$ .

### Calcul de la concentration en iode

La loi de propagation transgranulaire incluant l'effet de la concentration d'iode, il est donc nécessaire de calculer l'iode disponible dans le jeu au cours du temps. Pour cela, un modèle simple de relâchement d'iode, prenant en compte la présence des isotopes à vie courte de l'iode, a été développé. L'iode produit et présent dans le jeu n'attaquerait qu'une surface égale au dixième de la surface interne de la gaine ; cette surface correspondant aux plans interpastilles. Cet iode serait totalement disponible en pointe de fissure (son transport le long de la fissure est instantané, de même que les réactions chimiques se produisant en pointe de fissure).

### Intégration du modèle

Dans le code de calcul où est implanté ce modèle, une méthode de relâchement de nœuds est utilisée pour simuler la propagation de la fissure au cours du temps et ainsi prendre en considération l'influence de cette dernière sur l'état mécanique de la gaine. La figure IV-5 montre un exemple de maillage. La fissure de corrosion sous contrainte est positionnée en vis-à-vis d'une fissure de la pastille, où le maillage a été raffiné.

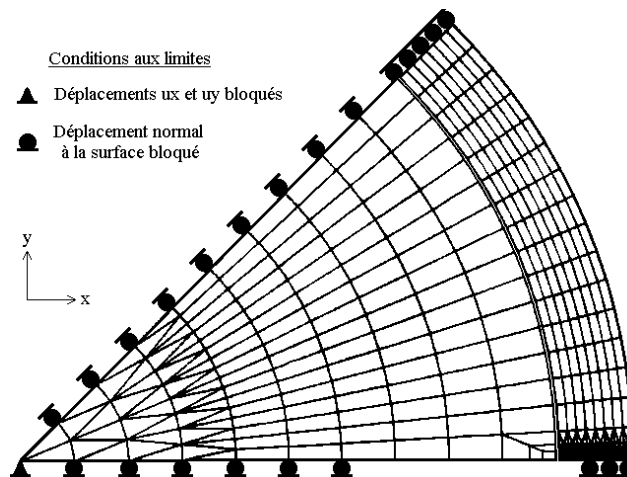


FIG. IV-5. Exemple de maillage utilisé.

### Exemple d'application

Afin d'illustrer les possibilités du modèle, nous allons reproduire ici l'exemple présenté par Jenkvist (fig. IV-6 et IV-7). Nous pouvons voir l'influence du coefficient de frottement  $f$  entre la pastille et la gaine sur la propagation de la fissure.



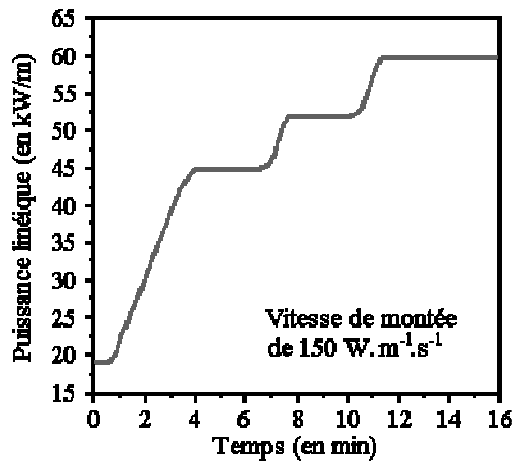


FIG. IV-6. Transitoire de puissance modélisé.

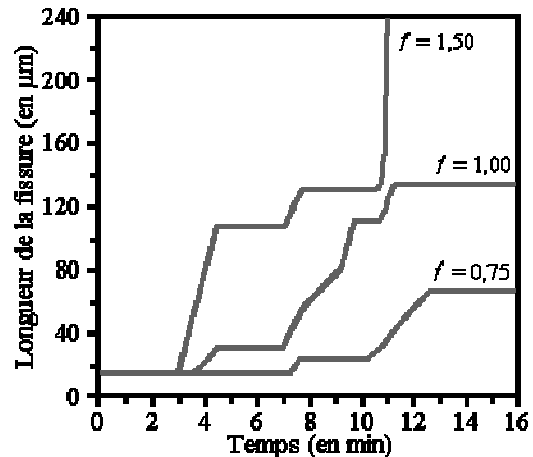


FIG. IV-7. Propagation de la fissure.

### 3 ANALYSE DES MODÈLES ET CONCLUSIONS

Analysons les différents modèles qui viennent d'être présentés.

Le modèle de Schuster-Delette considère que l'iode est toujours en quantité suffisante pour engendrer la corrosion sous contrainte, contrairement aux deux autres modèles. Afin de rendre compte des ruptures rapides en réacteur suite à un transitoire de puissance, les auteurs des modèles de l'EPRI et d'ABB ont intégré l'hypothèse d'un défaut initial, hypothèse apparaissant comme contestable ; la propagation d'une fissure à partir de ce défaut se faisant de manière transgranulaire. Ceci permet de ne pas modéliser la phase intergranulaire beaucoup plus lente en regard des temps à rupture observés en rampe. Pour le modèle d'ABB, l'intégration d'une loi de propagation ductile paraît surprenante, car, d'une part, il est observé peu de déchirure ductile sur les crayons rompus en réacteur (fig. II-3) et, d'autre part, les vitesses de propagation ductile sont très rapides comparées aux vitesses du processus de corrosion sous contrainte. Il est à noter que, dans l'exemple d'application rapporté au paragraphe 2.3, on ne connaît pas la part de la propagation ductile (et sa durée) sur la propagation totale de la fissure.

L'intérêt des modèles d'ABB et de l'EPRI réside dans la modélisation au cours du temps de la propagation de la fissure et de son influence sur les champs mécaniques. Le calcul de la concentration en iode dans le jeu proposé par le modèle d'ABB est également intéressant. Dans le cas du modèle de Delette, la propagation transgranulaire est indépendante de la température, ce qui est confirmé par des expériences de laboratoire, contrairement aux autres modèles.

Tous les modèles présentés ici utilisent les mêmes paramètres mécaniques pour décrire la fissuration par corrosion sous contrainte et, surtout, ils n'intègrent pas le comportement en fluage du matériau, qui ne peut être négligé dans le domaine de températures que voit la gaine en réacteur (relaxation des contraintes suite à un transitoire de puissance – chapitre I – et l'influence de la vitesse de montée en puissance qui n'est pas reproduite dans le cas où le comportement est purement élastoplastique).

Au chapitre précédent, nous avons mis en avant que le paramètre mécanique qui gouvernerait la fissuration par corrosion sous contrainte pourrait être la vitesse de déformation en pointe de fissure. Nous pouvons constater qu'aucun des modèles ne considère ce paramètre. L'analyse d'essais de corrosion sous contrainte permet de déterminer l'influence de différents paramètres sur la vitesse de propagation de la fissure et donc de disposer d'informations sur la formulation de la loi de propagation.

## ***PARTIE B***

# ***COMPORTEMENT MÉCANIQUE DU ZIRCALOY-4 À L'ÉTAT MÉTALLURGIQUE DÉTENDU***



## CHAPITRE V.

## COMPORTEMENT ÉLASTOVISCOPLASTIQUE DU ZIRCALOY-4 DÉTENDU

Ce chapitre est consacré à la modélisation du comportement mécanique du Zircaloy-4 à l'état détendu à la température de 350 °C pour deux niveaux d'irradiation. L'objectif est de disposer de lois de comportement qui nous permettront de modéliser avec confiance les essais de corrosion sous contrainte en pressurisation interne dont il sera question dans les prochains chapitres.

## 1 INTRODUCTION

Les alliages de zirconium présentent, du moins à l'état non irradié, une forte anisotropie de comportement mécanique qu'il est nécessaire de caractériser. En effet, la modélisation par éléments finis (EF) des phénomènes complexes intervenant en réacteur nécessite des modèles élastoviscoplastiques tridimensionnels robustes pour couvrir des domaines importants de contrainte et de vitesse de déformation. C'est, en particulier, le cas lors de l'étude de la corrosion sous contrainte des gaines, où les champs mécaniques sont complexes, notamment en pointe de fissure.

Les capacités prédictives d'un modèle de comportement macroscopique phénoménologique sont directement liées à la base expérimentale utilisée pour identifier le modèle. Ainsi, est-il nécessaire d'introduire de nombreuses données dans le but de décrire le comportement mécanique sur un large domaine. Cependant, de par la géométrie particulière des gaines de crayons combustibles et, notamment, de leur faible épaisseur, certaines composantes, pouvant être sollicitées au voisinage d'une fissure (fig. V-1), caractérisant l'anisotropie du matériau, ne sont pas accessibles expérimentalement.

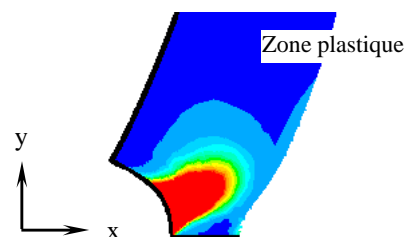


FIG. V-1. Sollicitations mécaniques en pointe de fissure de CSC (déformée amplifiée)

Néanmoins, connaissant les mécanismes physiques à l'origine de la déformation plastique, une approche micromécanique, incluant la microstructure et la texture cristallographique du matériau étudié, peut être mise en œuvre afin d'obtenir une description correcte du comportement mécanique ; une échelle plus fine est alors introduite par comparaison avec l'approche macroscopique classique. La confiance accordée à ce type de modélisation est fonction des éléments physiques introduits et de leur interprétation expérimentale ; le caractère prévisionnel de cette classe de modèles reste supérieur à celui des modèles macroscopiques phénoménologiques. Dans ce chapitre, après avoir fait quelques rappels sur l'alliage étudié, nous montrerons comment il est possible d'utiliser la structure hiérarchique existant entre les deux approches décrites ci-dessus pour obtenir une description correcte du comportement élastoviscoplastique du Zircaloy-4 détendu. Notamment, l'utilisation d'un modèle micromécanique permet d'enrichir la base expérimentale avec des essais « numériques », difficilement réalisables technologiquement ; la caractérisation complète de l'anisotropie de l'alliage est alors possible. La figure V-2 synthétise la démarche mise en place.

## 2 DESCRIPTION DU MATÉRIAU ÉTUDIÉ

L'objet de ce paragraphe est de présenter succinctement quelques éléments sur les alliages de zirconium qui nous aideront dans notre modélisation et notre compréhension du comportement

élastoviscoplastique de notre matériau d'étude. Pour de plus amples informations, de multiples références sont disponibles [Douglass 1971, Lemaignan et Motta 1994].

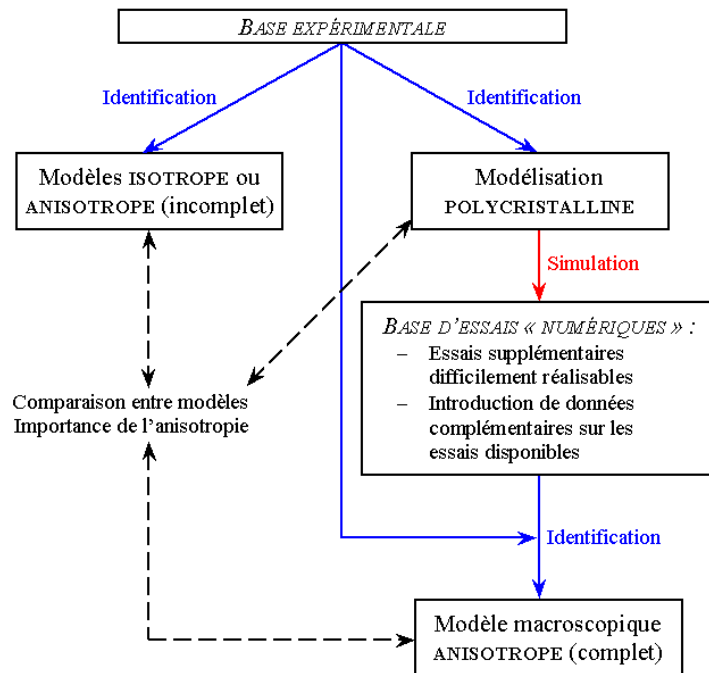


FIG. V-2. Démarche hiérarchique de caractérisation du comportement mécanique anisotrope.

## 2.1 STRUCTURE CRISTALLINE

Les mécanismes de déformation et les propriétés physiques d'un matériau sont fortement liés à l'arrangement spatial des atomes le constituant, ainsi qu'à la nature de ses atomes.

Le zirconium pur présente à l'état solide deux structures cristallines différentes. En dessous de 862 °C, température de transformation allotropique  $T_{\alpha \leftrightarrow \beta}$ , la phase stable du zirconium, dite phase  $\alpha$ , correspond à la maille hexagonale compacte (HC), définie par deux paramètres cristallins  $a$  et  $c$ . Au-dessus de 862 °C, et jusqu'à la température de fusion de 1850 °C, la maille cristallographique de la phase  $\beta$  du zirconium a une structure cubique centrée (CC), de paramètre de maille  $a$ . La figure V-3 représente ces différentes structures cristallines.

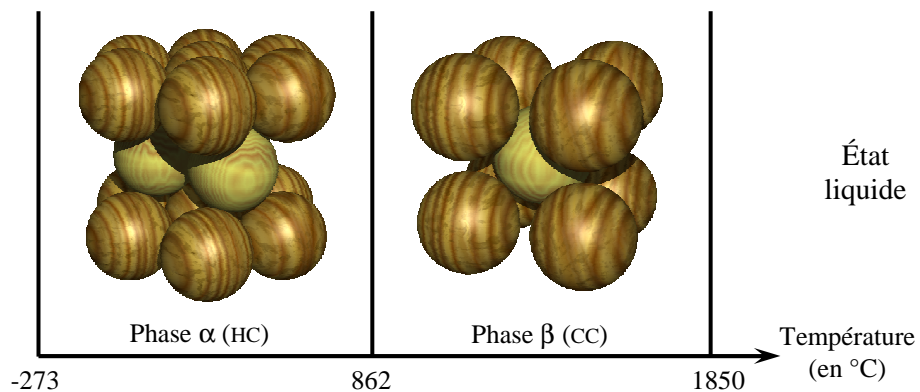


FIG. V-3. Structure cristalline du zirconium en fonction de la température.

Afin de mieux en appréhender les symétries, la représentation de la maille HC de la figure V-3, dont le volume est le triple de celui de la maille élémentaire, est couramment utilisée, ainsi que la notation de Miller à quatre indices pour repérer les plans et directions cristallographiques.

À la température ambiante (25 °C), les paramètres de maille du zirconium pur ont pour valeurs :  
 $c = 0,5147$  nm et  $a = 0,3232$  nm, soit  $c/a = 1,593$ .

Ces paramètres évoluent avec la température, comme le montre la figure V-4, le rapport  $c/a$  augmentant avec la température. Ils sont également sensibles aux teneurs en différents éléments d'alliage. La figure V-4 illustre l'influence de la teneur en hafnium<sup>1</sup> et les valeurs reportées dans le tableau V-1 montrent l'influence d'un apport de quelques éléments chimiques.

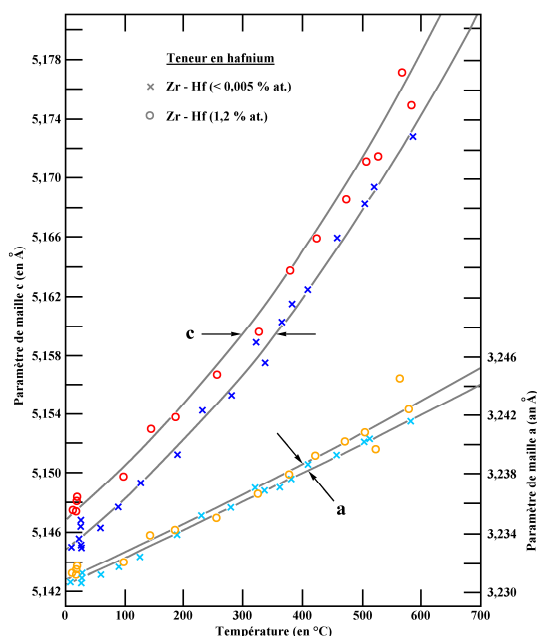


FIG. V-4. Évolution des paramètres cristallins  $c$  et  $a$  du zirconium  $\alpha$  en fonction de la température pour deux teneurs en hafnium [Lustman et Kerze 1955].

TABLEAU V-1. Effet de l'apport de 1 % atomique de différents éléments d'alliage et impuretés sur les paramètres de maille du zirconium phase  $\alpha$ . Données issues de [Lustman et Kerze 1955].

Élément	Variation en % du paramètre $c$	Variation en % du paramètre $a$	Variation en % du rapport $c/a$
Oxygène	+0,040	+0,031	+0,007
Étain	+0,012	-0,086	+0,099
Hafnium	-0,032	-0,077	-0,021
Titane	-0,089	-0,093	+0,004

Le modèle des sphères dures, où la distance entre tous les atomes du réseau est égale à  $a$ , nous conduit au rapport idéal suivant :  $(c/a)_{\text{idéal}} = \sqrt{8/3} \approx 1,633$ . L'écart avec cette valeur idéale permet de classer les métaux à structure hexagonale compacte (classement toutefois arbitraire) et détermine les plans cristallographiques les plus denses dans le matériau étudié.

Le zirconium, ainsi que ses alliages, présente un écart négatif à la compacité idéale. Quelles que soient la température dans le domaine  $\alpha$  et les teneurs en éléments d'addition ou impuretés, ce rapport  $c/a$  reste inférieur à la valeur idéale. Dans ce cas, le plan prismatique est le plan le plus dense ; les directions denses sont les directions  $\langle a \rangle$  (au nombre de trois) incluses dans le plan de base, qui est un plan compact.

<sup>1</sup> À l'état naturel, le hafnium est fortement présent dans le minerai dont est extrait le zirconium. Il doit en être séparé, car, contrairement au zirconium, il possède une grande section efficace d'absorption des neutrons (neutrophage).

Pour notre modélisation polycristalline, nous retiendrons les valeurs suivantes :

$$c = 0,5147 \text{ nm et } a = 0,3232 \text{ nm, soit } c/a = 1,593 .$$

## 2.2 COMPOSITION CHIMIQUE

Le matériau, dont nous allons modéliser le comportement mécanique et étudier par la suite la sensibilité à la corrosion sous contrainte par l'iode, est l'alliage de zirconium majoritairement utilisé, à l'heure actuelle, comme matériau de gainage des crayons de combustible des REP français. Il s'agit du Zircaloy-4 à basse teneur en étain, dont nous avons reporté la composition chimique au tableau V-2 (composition en accord avec la norme ASTM B350.90). Le matériau étudié se présente sous forme tubulaire et c'est un produit de gainage de finition industrielle.

TABLEAU V-2. Composition chimique du Zircaloy-4 « bas étain » étudié.

Élément	Zr	Fe	Cr	Fe+Cr	Sn	O
Teneur (% massique)	complément	0,21	0,10	0,31	1,32	0,120

Dans la matrice de zirconium  $\alpha$ , ces éléments d'addition et les impuretés soit se trouvent en position substitutionnelle (cas de Fe, Cr, Sn, Ni, Hf...), soit occupent les sites interstitiels de la maille hexagonale (comme pour O, C, H, N...). Le tableau V-3 permet d'apprécier la taille atomique de ces éléments par comparaison avec l'atome de zirconium.

TABLEAU V-3. Rayons atomique et de covalence de quelques éléments chimiques.

Élément	Zr	Insertion				Substitution			I
		H	C	O	N	Sn	Fe	Cr	
Rayon atomique (en nm)	0,155	0,025	0,070	0,060	0,065	0,145	0,140	0,140	0,132
Rayon de covalence (en nm)	0,148	0,037	0,077	0,073	0,075	0,141	0,125	0,127	0,133

On distingue les éléments dits alphagènes en solution solide (O, C, Hf et Sn) dans la matrice de zirconium  $\alpha$ , augmentant la température de transition  $T_{\alpha \leftrightarrow \beta}$ , et les éléments bétagènes (Fe, Cr, Nb et H), stabilisant la phase  $\beta$ , où ils sont solubles alors qu'ils sont très peu solubles dans la phase  $\alpha$  (limite de solubilité inférieure à 120 ppm pour le fer et 200 ppm pour le chrome et le nickel). Ces éléments bétagènes se retrouvent dans la matrice de zirconium  $\alpha$  sous forme de précipités de seconde phase. Le rapport des concentrations en Fe et Cr de ces précipités de Laves  $Zr(Fe,Cr)_2$  est identique à celui de la composition de l'alliage. La taille et la distribution de ces précipités, jouant un rôle important dans la lutte contre la corrosion, sont contrôlées lors du processus de mise en forme du matériau par différents traitements de recuit intermédiaires.

Nous allons maintenant rappeler rapidement le rôle et l'influence sur le comportement mécanique de ces éléments d'addition.

**Oxygène :** Cet élément interstitiel est important puisque, contrairement à beaucoup d'autres alliages métalliques, il s'agit d'un élément d'addition ajouté volontairement au cours de l'élaboration du matériau et non d'une impureté. L'oxygène a un effet durcissant sur l'alliage en augmentant la limite d'écoulement et la charge maximale ; par contre, l'addition de cet élément entraîne une baisse de la ductilité du matériau (diminution des allongements réparti et à rupture). La mobilité importante de cet élément, dans le domaine des températures « moyennes », qui recouvre le domaine des températures vues par la gaine en réacteur, est à l'origine du phénomène

de « vieillissement dynamique » des alliages de zirconium [Prioul 1995], sur lequel nous reviendrons. De plus, le zirconium possède une forte affinité pour l'oxygène à toute température en formant une couche passive de zircone ( $\text{ZrO}_2$ ) protectrice d'une dizaine de nanomètres d'épaisseur.

**Étain :** Cet élément a été introduit pour compenser l'effet néfaste de l'azote (impureté) sur la tenue à la corrosion. Des améliorations du processus de fabrication ont permis de diminuer la teneur en azote et donc de baisser la teneur en étain vers la valeur inférieure définie par la norme (d'où l'appellation « bas étain » de l'alliage étudié). Toutefois, une baisse de concentration en étain entraîne une augmentation de la vitesse de fluage du matériau.

**Fer :** Cet élément a peu d'influence sur les caractéristiques mécaniques des alliages de zirconium. Par contre, la taille des grains, ainsi que l'énergie de faute d'empilement, diminuent avec une augmentation de la concentration en fer.

**Chrome :** Il contribue à améliorer la tenue à la corrosion de l'alliage. Il est présent sous forme de précipités, associé au fer.

**Hydrogène :** Bien qu'étant une impureté de fabrication, cet élément a un effet important sur le comportement viscoplastique du matériau [Rupa 2000]. En effet, au cours de sa vie en réacteur, la gaine va se charger en hydrogène suite à la corrosion de celle-ci par le fluide caloporteur. Cet hydrogène est en solution solide dans la matrice ou précipite sous forme d'hydrures (la solubilité de l'hydrogène étant fortement dépendante de la température). Le comportement mécanique fragilisant de ces hydrures est particulièrement important à étudier lors de l'entreposage des crayons combustibles, où les conditions thermomécaniques sont différentes de celles régnant en réacteur.

## 2.3 MICROSTRUCTURE ET TEXTURE CRISTALLOGRAPHIQUE

### Présentation de la texture

Suite à l'élaboration des tubes de gainage, les alliages de zirconium présentent une texture cristallographique anisotrope, très marquée, comme le montre la figure V-5 pour notre matériau d'étude.

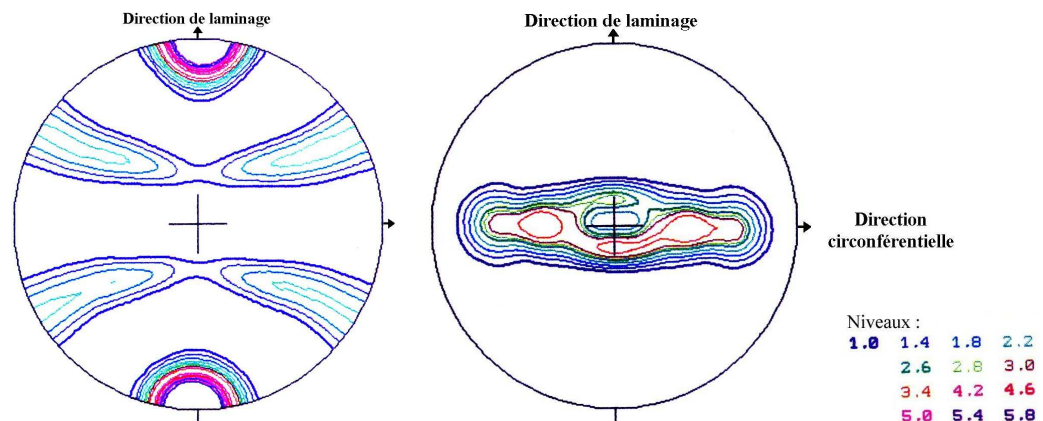


FIG. V-5. Texture cristallographique du Zircaloy-4 détendu.

Figures de pôles (a) plan prismatique ( $10\bar{1}0$ ), (b) plan de base (0002) [Béchade 1999].

Les axes  $\langle c \rangle$  de la maille hexagonale sont perpendiculaires à la direction de laminage (axe du tube) et sont orientés majoritairement à  $\pm 35^\circ$  de la direction radiale des tubes. Les plans prismatiques ( $10\bar{1}0$ ) sont perpendiculaires à la direction de laminage, ce qui est caractéristique d'une texture d'un matériau détendu (un traitement de recristallisation impliquant une rotation de  $30^\circ$  de ces plans autour de la direction radiale). En supposant que les directions d'anisotropie du



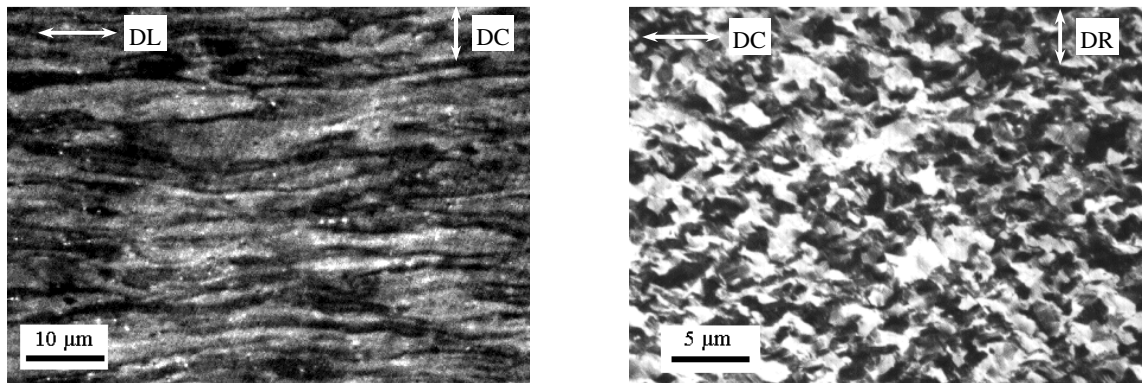
matériau sont définies par la texture, les alliages de zirconium auront donc un comportement orthotrope dont les directions sont respectivement les directions radiale, circonférentielle et axiale des tubes.

#### *Évolution de la texture avec l'irradiation*

Il est légitime de se poser la question sur une éventuelle corrélation entre une évolution de la texture cristallographique et les modifications du comportement mécanique des alliages de zirconium avec l'irradiation. Expérimentalement [Béchade 1999], il n'a pu être mis en évidence une évolution significative de la texture avec l'irradiation. Dans la suite de ce chapitre, la texture cristallographique sera la même quel que soit le niveau d'irradiation étudié et elle ne sera donc pas à l'origine des modifications du comportement viscoplastique du matériau au cours de son irradiation. Une évolution de la texture n'est pas envisageable dans les conditions normales de fonctionnement, sauf suite à une recristallisation (partielle) du matériau due à des températures élevées, liées à la présence d'une forte couche de zircone.

#### *Description de la microstructure*

La microstructure de la matrice de zirconium est déterminée par le traitement thermique final du processus de fabrication. Les alliages de zirconium présentent un état métallurgique soit détendu, soit recristallisé (voir le chapitre I). Nous ne décrivons ici que les caractéristiques de la microstructure obtenue pour l'état détendu. Le traitement de détensionnement, dont le but est de relaxer les contraintes internes, ne restaure que partiellement l'écrouissage du matériau. La microstructure est donc proche de celle obtenue lors la mise en forme de l'alliage. Aucune zone recristallisée n'a été observée dans le matériau [Béchade 1999]. Les grains sont très allongés suivant la direction de laminage du tube (DL). Les dimensions moyennes de ces grains sont les suivantes : 20  $\mu\text{m}$  de longueur suivant DL et 2  $\mu\text{m}$  suivant les deux directions transversales (fig. V-6). Nous assimilerons les grains de la microstructure à des ellipsoïdes de révolution de dimensions constantes (données ci-dessus). Le matériau à l'état détendu conserve une structure fortement écrouie qui présente une densité initiale de dislocations très élevée.



DL : direction de laminage (axe du tube), DC : direction circonférentielle, DR : direction radiale

FIG. V-6. Microstructure du Zircaloy-4 détendu. (a) direction de laminage, (b) directions transverses.

## 2.4 MODES DE DÉFORMATION DES ALLIAGES DE ZIRCONIUM

Les modes de déformation dans les métaux à structure hexagonale compacte sont peu nombreux et complexes. De plus, ces modes de déformation ne sont pas symétriques du fait de l'anisotropie de la maille cristalline. Ces mécanismes de déformation sont au nombre de trois : le glissement cristallographique, le maillage et la formation de bandes de pliage [Tenckhoff 1988].

Le maillage est observé à basse température et également pour des déformations importantes (supérieures à 3 %). Ce mécanisme de déformation permet d'accommoder les déformations

suivant l'axe  $\bar{c}$  de la maille hexagonale, lorsque le glissement cristallographique seul n'est pas suffisant. L'augmentation de la température et la présence d'éléments interstitiels, tels que l'oxygène, favorisent la disparition du maclage au profit du glissement cristallographique. Ce mécanisme, bien que mal connu, doit pourtant être modélisé lors de l'étude de la mise à froid en forme des alliages de zirconium (laminage de plaques et tubes).

Le mode de déformation par formation de bandes de pliage n'a été observé dans le zirconium qu'à haute température (540 °C) et dans des grains possédant des orientations particulières.

Par la suite, toutes nos études et modélisations sont conduites à la température de 350 °C où le glissement cristallographique sera considéré comme le seul mode de déformation plastique.

#### Modes de glissement dans les métaux à structure hexagonale compacte

Le nombre de familles de glissement est important, mais chacune de ces familles possède peu de systèmes de glissement. Il a été recensé cinq familles de glissement susceptibles d'être activées dans les métaux à structure hexagonale compacte. La majorité des systèmes de glissement ont pour direction cristallographique  $\langle a \rangle$ . Peu de systèmes, dont le vecteur de Burgers est  $\langle c+a \rangle$ , permettent d'accommoder la déformation suivant l'axe  $\langle c \rangle$ . Ces différents modes de glissement sont représentés à la figure V-7 et regroupés dans le tableau V-4.

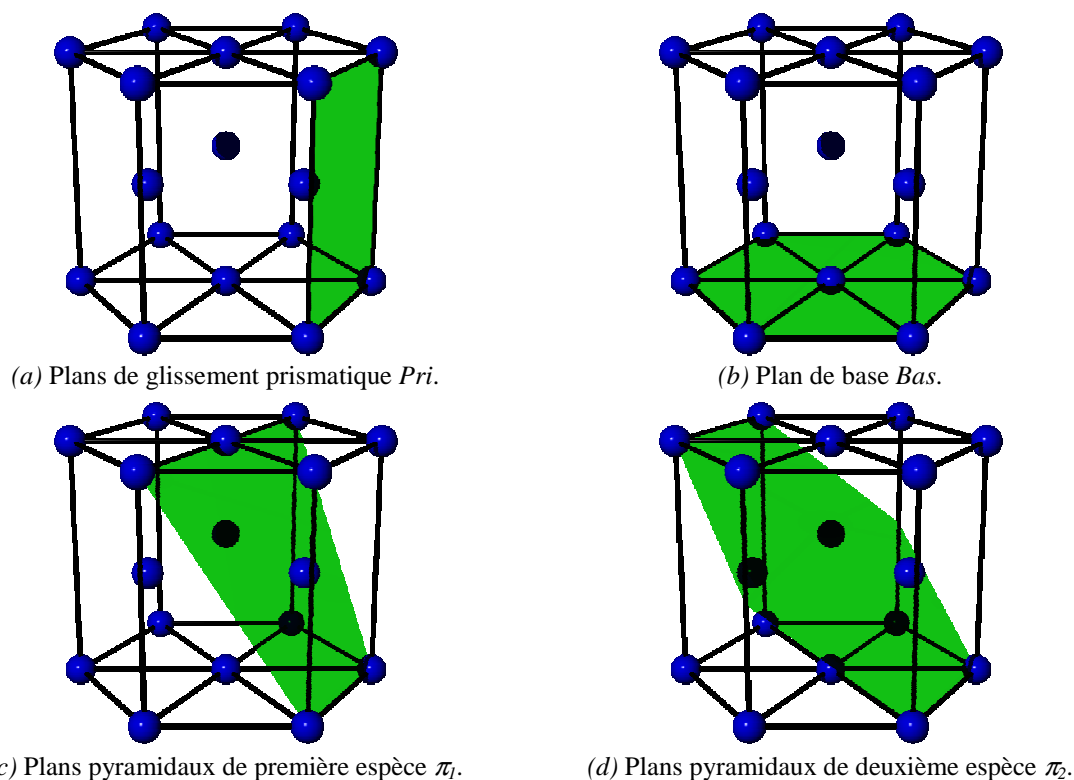


FIG. V-7. Principales familles de glissement observées dans les métaux à structure hexagonale.

TABLEAU V-4. Recensement des principaux systèmes de glissement de la maille hexagonale.

Plan cristallographique		Direction de glissement	Nombre de systèmes de glissement	
Nom	Symbole		total	indépendants
Prismatique	Pri	$\langle a \rangle$	3	2
Basal	Bas	$\langle a \rangle$	3	2
Pyramidal de 1 <sup>re</sup> espèce	$\pi_1$	$\langle a \rangle$	6	4
		$\langle c+a \rangle$	12	10
Pyramidal de 2 <sup>e</sup> espèce	$\pi_2$	$\langle c+a \rangle$	6	5

### Glissement principal dans les alliages de zirconium

Dans le cas des métaux à structure cubique à faces centrées, les trois règles suivantes permettent de prévoir les systèmes de glissement potentiellement activables :

1. Les directions de glissement sont les directions denses, c'est-à-dire avec le plus petit vecteur de Burgers  $\vec{b}$ . Dans le cas du zirconium, il s'agit des directions  $\langle a \rangle$ .
2. Les plans de glissement sont les plans denses. Comme nous l'avons vu précédemment, il s'agit des plans prismatiques pour le zirconium. Rappelons que ces plans sont des plans rugueux.
3. Sous un chargement connu, les systèmes actifs sont ceux ayant une cission effective supérieure à une cission critique : c'est la loi de Schmid et Boas, le système principal possédant la cission critique la moins élevée.

Conformément aux règles énoncées ci-dessus, les résultats expérimentaux, disponibles dans la littérature (voir par exemple [Regnard et Lemaignan 1995, Geyer 1999]), montrent que, pour les alliages de zirconium non irradiés, le glissement principal ou facile est le glissement prismatique  $\text{Pri}\langle a \rangle$  à toute température et dès les faibles niveaux de déformation.

Notons toutefois que la règle 2 n'est pas vérifiée pour le béryllium qui possède pourtant, parmi les métaux à structure hexagonale, le plus petit rapport  $c/a$ . Pour ce métal, le mode de glissement principal est le glissement basal  $\text{Bas}\langle a \rangle$ , comme pour les matériaux ayant un rapport  $c/a$  supérieur à la valeur idéale. Legrand [1985] a proposé un critère simple (et vérifié) permettant de prédire le système de glissement facile dans les métaux à structure hexagonale : il s'agit du système ayant la plus petite énergie de faute d'empilement (EFE).

La cission critique d'écoulement sur le plan prismatique diminue avec la température, mais augmente avec la concentration en oxygène (effet durcissant) comme le montre la figure V-8.

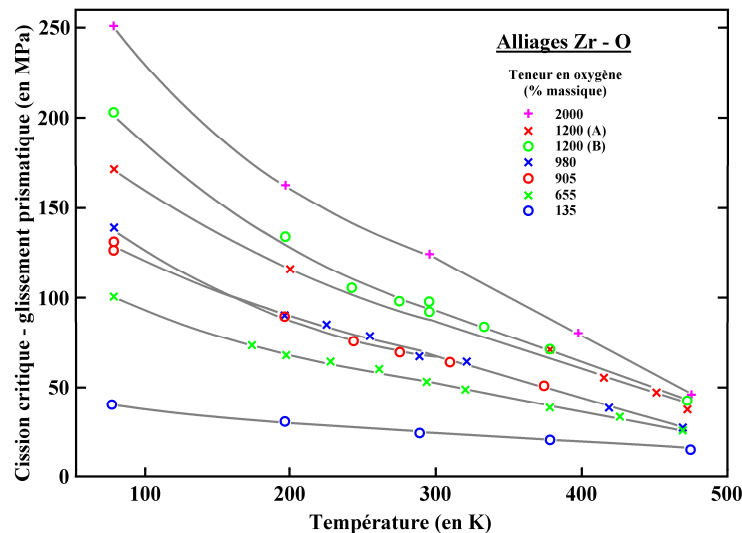


FIG. V-8. Évolution de la cission critique d'écoulement en fonction de la température et de la teneur en oxygène [Soo et al. 1968].

Le vieillissement dynamique des alliages de zirconium correspond à l'ancrage/désancrage des dislocations mobiles par la diffusion des atomes d'oxygène en solution solide [Prioul 1995]. Ce phénomène se traduit par la présence, sur l'évolution de la contrainte d'écoulement en fonction de la température, d'un palier, qualifié par abus de langage d'« athermique », et qui résulte d'effets opposés que sont l'augmentation de la mobilité des dislocations et de l'ancrage de ces dernières par les atomes d'oxygène. Dans le domaine de températures associé à ce palier athermique, sur les alliages de zirconium recristallisés, une sensibilité à la vitesse de sollicitation nulle, voire négative, est observée ; la contrainte d'écoulement diminue lorsque la vitesse de déformation augmente dans une certaine gamme de vitesses (voir par exemple [Derep et

al. 1980]). Le domaine de températures associé au vieillissement dynamique est fonction de la composition chimique du matériau et de la vitesse de sollicitation en déformation, ce qui rend très difficiles les comparaisons de résultats expérimentaux (caractérisation mécanique, sensibilité à la corrosion sous contrainte) entre différents alliages de zirconium. Le volume d'activation du glissement prismatique augmente avec la température, mais diminue avec la concentration en oxygène, et présente un pic dans le domaine de vieillissement dynamique. Nous verrons au paragraphe 5, que le Zircaloy-4 détendu ne présente pas, à 350 °C, de sensibilité à la vitesse anormale.

D'autres particularités sont à noter :

- Une différence de mobilité entre les dislocations coin et vis est observée, différence qui serait corrélée à la structure complexe du cœur des dislocations. La déformation plastique est contrôlée principalement par le mouvement des dislocations vis (nous ne distinguerons toutefois pas les dislocations vis et coin dans notre approche micromécanique).
- Des écarts à la loi de Schmid ont été observés à la température ambiante mais ces écarts disparaîtraient avec la température (résultats obtenus sur un alliage de titane). Sans plus d'informations, nous avons utilisé cette loi, même si elle est parfois mise en défaut pour les métaux à structure hexagonale.

#### *Glissements secondaires dans les alliages de zirconium*

Bien que les informations dans la littérature sur l'activation des systèmes secondaires soient beaucoup moins nombreuses que sur l'étude du glissement prismatique, des observations ont été réalisées et conduisent aux tendances suivantes.

- Le glissement basal  $\text{Bas}\langle a \rangle$  n'est faiblement observé qu'à haute température ( $T > 800 \text{ K}$ ) [Akhtar 1973], ou pour des déformations importantes à 20 °C, supérieures à 1 % à 350 °C dans le Zircaloy-4 recristallisé [Geyer 1999]. Par contre, Régnard *et al.* [1995] n'ont pas observé de glissement basal dans les mêmes conditions que Geyer.
- Le glissement pyramidal  $\pi_1\langle a \rangle$  est le système secondaire le plus actif malgré une cission critique élevée, son activation augmentant avec la température.
- Le glissement pyramidal  $\pi_1\langle c+a \rangle$  est activé quelle que soit la température, dès qu'il est nécessaire d'accommoder la déformation plastique suivant l'axe  $\langle c \rangle$  de la maille hexagonale.

En terme de cission critique  $\tau_c$ , nous pouvons retenir le classement suivant :

$$\tau_c(\text{Pri}\langle a \rangle) \leq \tau_c(\pi_1\langle a \rangle) \leq \tau_c(\text{Bas}\langle a \rangle) \leq \tau_c(\pi_1\langle c+a \rangle).$$

Par contre, nous n'avons pas de classement similaire avec les volumes d'activation  $V_{\text{act}}$ . Toutefois, le volume d'activation du glissement prismatique est le plus élevé et celui du glissement pyramidal  $\pi_1\langle c+a \rangle$  est le plus faible. D'après la littérature (par exemple [Geyer 1999]), les glissements secondaires sont plus sensibles à la vitesse de déformation que le glissement prismatique.

#### *Impact de l'irradiation sur les modes de déformation*

Le bombardement neutronique que subit la gaine en réacteur n'est pas sans conséquence sur le comportement mécanique du matériau, ainsi que sur sa résistance à la corrosion (l'irradiation modifie la composition des précipités, le fer se retrouvant dissout dans la matrice). L'irradiation neutronique crée deux types de défauts.

- Des boucles prismatiques, de type coin et de vecteur de Burgers  $\langle a \rangle$ , sont engendrées dès le début de l'irradiation et se situent dans les plans prismatiques ou proches de ces derniers. Ces boucles sont soit lacunaires, soit interstitielles (leur proportion dépendant de la température à laquelle le matériau est bombardé) ; leur taille est d'environ 10 nm. La densité de ces boucles  $\langle a \rangle$  sature après une irradiation équivalente à deux cycles de fonctionnement en REP.

- D'autres défauts sont créés. Il s'agit de boucles  $\langle c \rangle$  fautées, lacunaires, situées dans le plan de base, où elles engendrent des fautes d'empilement. Leur apparition intervient après un demi-cycle d'irradiation en réacteur. Leur taille est supérieure à celle des boucles prismatiques (environ 100 nm), mais leur densité est beaucoup plus faible.

Ces défauts peuvent être éliminés par recuit du matériau [Northwood 1977]. La présence de ces défauts est à l'origine d'un changement de mode de glissement principal et d'un durcissement du matériau [Lefebvre et al. 1998]. En effet, les rares observations réalisées sur matériau irradié (état recristallisé et faible niveau d'irradiation) montrent que le glissement basal est le système activé dès les faibles niveaux de sollicitation, alors qu'il est très peu actif sur le matériau non irradié. Le glissement pyramidal  $\pi_1 \langle a \rangle$  est toujours le système secondaire le plus actif [Lefebvre et al. 1998].

On peut également noter [Prioul 1995] que l'irradiation supprime les effets du vieillissement dynamique (plus la teneur en oxygène est élevée, plus l'irradiation doit être importante), rendant ainsi le comportement viscoplastique du matériau normal (sensibilité à la vitesse positive). L'argument avancé pour expliquer cette disparition serait lié au piégeage des atomes d'oxygène par les lacunes.

### 3 MODÉLISATION MICROMÉCANIQUE DU COMPORTEMENT DU ZIRCALOY-4

L'objectif d'une modélisation polycristalline est de déterminer le comportement mécanique macroscopique en prenant en compte la microstructure du matériau étudié et les mécanismes physiques à l'origine de la déformation plastique de ce matériau, par l'introduction de variables dont la signification physique est claire. Ces variables, qualifiées de « microscopiques », sont définies à l'échelle des hétérogénéités du volume élémentaire représentatif (VER), défini, quant à lui, au niveau macroscopique dans le cadre de la mécanique des milieux continus (MMC).

Dans le cas des métaux purs et alliages métalliques polycristallins, le grain constitue actuellement l'hétérogénéité « microscopique ». Les différentes variables définies au niveau d'un grain correspondent alors à des grandeurs moyennes, puisque l'on ne tient pas compte des structures intragranulaires. Un schéma autocohérent est généralement utilisé pour estimer le comportement mécanique recherché d'un agrégat polycristallin.

#### 3.1 PRINCIPE DE L'APPROCHE POLYCRISTALLINE

La construction d'un modèle polycristallin consiste en la réalisation des trois étapes suivantes, résumée sur la figure V-9 [Zaoui 2001] :

- Étape de représentation. Cette étape consiste, dans un premier temps, à la définition des « phases » constitutives d'un agrégat polycristallin et, dans un second temps, à la description du comportement intragranulaire ou « intraphase ». Plusieurs choix sont possibles suivant le cadre de l'étude. On distingue, d'une part, les lois plastiques et viscoplastiques (avec ou sans seuil), souvent utilisées afin de décrire les évolutions de texture et de microstructure lors de chargements monotones (mise en forme...) pour lesquelles la déformation élastique est négligée et, d'autre part, les lois élasto(visco)plastiques.
- Étape de concentration (ou de localisation) qui relie les grandeurs macroscopiques aux grandeurs microscopiques, définies au niveau d'une « phase », à l'aide d'un changement d'échelle macro-micro.
- Étape d'homogénéisation conduisant à la détermination du comportement macroscopique recherché par un passage de l'échelle microscopique à l'échelle macroscopique.

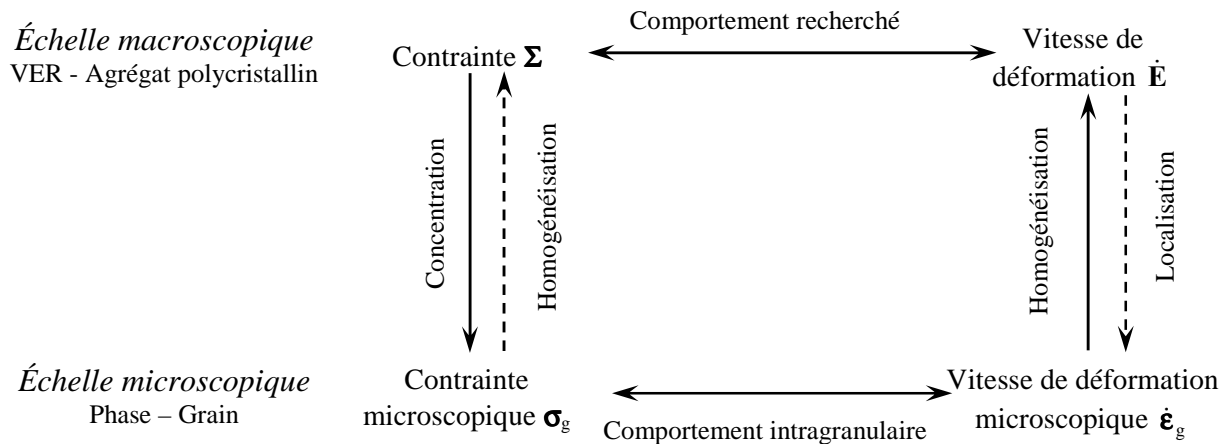


FIG. V-9. Principe de l'approche polycristalline en élastoviscoplasticité (EVP).

Nous allons décrire succinctement, dans la suite de ce paragraphe, chacune de ces trois étapes avant de présenter plus en détail, dans les paragraphes suivants, les modèles retenus pour décrire le comportement élastoviscoplastique du Zircaloy-4 détendu à 350 °C. Les notations utilisées dans la suite de ce chapitre sont présentées au paragraphe 3.1.4.

### 3.1.1 Étape de représentation

Pour l'étude des agrégats polycristallins métalliques, le grain est la plus petite hétérogénéité considérée. Cependant, le VER contient un très grand nombre de grains (plusieurs milliers). Il n'est donc pas souvent possible (et raisonnable) de prendre en compte le comportement mécanique et la position géométrique de chacun des grains de l'agrégat.

Dans le cas d'un polycristal, une description incomplète est utilisée, comprenant la fonction de distribution des orientations cristallines (FDOC), décrivant l'orientation initiale des grains par rapport à un repère lié à l'échantillon (repère matériau) et quelques éléments sur la morphologie moyenne des grains ; cependant, la notion de taille de grain n'est pas introduite de manière explicite. Lorsque le matériau présente une texture cristallographique très marquée (comme c'est le cas pour le Zircaloy-4), un comportement fortement anisotrope peut alors être modélisé.

Derrière ce choix, se cachent les hypothèses simplificatrices suivantes.

- Un « grain » désigne en réalité l'ensemble des grains de l'agrégat polycristallin ayant la même orientation cristalline. Par abus de langage, nous confondrons par la suite les notions de grain et de « phase ».
- Le voisinage hétérogène et différent pour chaque grain n'est donc pas modélisé tant d'un point de vue géométrique que mécanique, puisque l'on travaille sur une famille de grains distribués *a priori* dans tout l'agrégat et que l'on ne tient pas compte également des positions relatives de chaque phase.
- En général, compte tenu du grand nombre de phases de l'agrégat, les effets de voisinage sur un unique grain peuvent être vus (en moyenne) comme équivalents aux interactions mécaniques que subirait ce même grain plongé dans un milieu macroscopique homogène dont le comportement est celui de tous les grains de l'agrégat (comportement recherché). L'utilisation d'un schéma autocohérent d'homogénéisation est alors possible.

L'étape de représentation se poursuit par la description du comportement mécanique non linéaire intragranulaire. En général, la déformation plastique du matériau étudié a pour seule origine le glissement cristallographique des dislocations.

### 3.1.2 Étape de concentration (ou de localisation)

On parle de concentration (respectivement de localisation) lorsque l'on relie les grandeurs macroscopiques (contrainte, déformation...) à la contrainte (respectivement la déformation) microscopique définie au niveau d'un grain, considérée homogène à l'intérieur de ce grain.

En effet, cette étape correspond à la résolution d'un problème de calcul de structure qui consiste à déterminer les champs mécaniques locaux ( $\boldsymbol{\sigma}$ ,  $\boldsymbol{\varepsilon}$ ,  $\dot{\boldsymbol{\varepsilon}}$ ,  $\boldsymbol{\varepsilon}^{vp}$ ,  $\dot{\boldsymbol{\varepsilon}}^{vp}$ ) en tout point M du VER connaissant les conditions aux limites s'appliquant sur le VER, données par  $(\boldsymbol{\Sigma}, \mathbf{E}, \dot{\mathbf{E}})$ , ce qui s'écrit formellement par :

$$\boldsymbol{\sigma}(\mathbf{M}) = \mathbf{A}(\mathbf{M}, g, \dots) \boldsymbol{\Sigma} \text{ et } \dot{\boldsymbol{\varepsilon}}(\mathbf{M}) = \mathbf{B}(\mathbf{M}, g, \dots) \dot{\mathbf{E}},$$

$\mathbf{A}$  et  $\mathbf{B}$  respectivement tenseurs de concentration et de localisation, qu'il s'agit de déterminer.

Différents modèles (on parle aussi de règles ou de lois) ont été développés ; leur choix dépend de l'application et du but recherchés.

Les premiers modèles avaient pour but de modéliser l'écoulement plastique d'un polycristal et la déformation élastique n'était pas prise en compte. Le modèle de Sachs [1928] considère que les contraintes microscopiques sont proportionnelles aux contraintes macroscopiques :  $\boldsymbol{\sigma} = k_g \boldsymbol{\Sigma}$ , le facteur  $k_g$  étant fonction du grain  $g$ . Le modèle statique (de Batdorf-Budiansky) [1949] correspond au cas où les contraintes sont uniformes dans le polycristal ( $k_g = 1$ ). Le modèle de Taylor [1938], toujours couramment utilisé, est simple et postule l'uniformité de la déformation plastique (ou du gradient des vitesses de déformation plastique) dans le polycristal :  $\boldsymbol{\varepsilon}^p(\mathbf{M}) = \mathbf{E}^p$  ou  $(\dot{\boldsymbol{\varepsilon}}^p(\mathbf{M}) = \dot{\mathbf{E}}^p)$ . Le succès de ce modèle tient dans ses prévisions qualitatives correctes de l'évolution de textures. Il existe un certain nombre de variantes à ce modèle également couramment utilisées. Cependant, ce modèle est qualifié de « trop raide », car il surestime les contraintes par rapport à l'expérience. On peut également citer le modèle de Lin-Taylor qui généralise le modèle de Taylor en prenant en compte l'élasticité du matériau, supposée homogène et isotrope, et en écrivant l'uniformité de la (vitesse de) déformation totale :  $\boldsymbol{\varepsilon}(\mathbf{M}) = \mathbf{E}$ , ce qui conduit à la loi de localisation suivante :  $\boldsymbol{\sigma} - \boldsymbol{\Sigma} = 2\mu(\boldsymbol{\varepsilon}^p - \mathbf{E}^p)$ ,  $\mu$  est le module de cisaillement du matériau. Notons que les modèles de Taylor et Batdorf-Budiansky ont chacun un caractère extrémal et ainsi encadrent le comportement (purement plastique) d'un polycristal ; toutefois, ces bornes sont assez éloignées l'une de l'autre et ne suffisent pas, à elles seules, à décrire le comportement mécanique du matériau.

La seconde génération de modèles permettant de décrire les interactions entre grains d'un polycristal a vu le jour suite à la résolution analytique du problème de l'inclusion d'Eshelby [1957], dont nous allons rappeler brièvement les principaux résultats.

Considérons un domaine  $\Omega$  (« la matrice ») infini, homogène, élastique, dont le tenseur d'élasticité est  $\mathcal{C}^{el}_{\Omega}$ , qui n'est soumis à aucun chargement à l'infini. Dans ce milieu, il existe un domaine I (« l'inclusion ») fermé, soumis à une déformation libre  $\boldsymbol{\varepsilon}_I^L$  (déformations thermique, résiduelle, gonflement sous irradiation...) nulle en dehors de I. Dans  $\Omega$ ,  $\boldsymbol{\sigma} = \mathcal{C}^{el}_{\Omega} \boldsymbol{\varepsilon}$  et dans  $\Omega \setminus I$ ,  $\boldsymbol{\sigma} = \mathcal{C}^{el}_{\Omega} (\boldsymbol{\varepsilon} - \boldsymbol{\varepsilon}_I^L)$ .

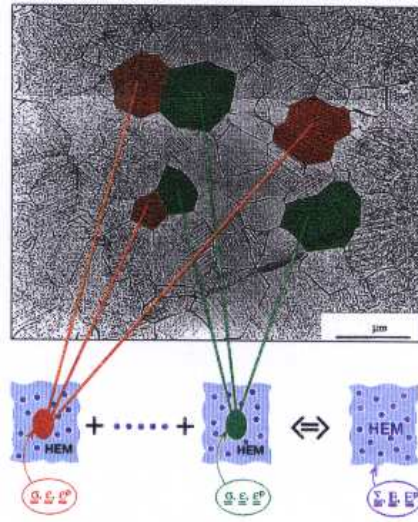
Les conclusions d'Eshelby sont :

Si I est un *ellipsoïde* et  $\boldsymbol{\varepsilon}_I^L$  est *uniforme* dans I, alors la déformation (totale)  $\boldsymbol{\varepsilon}_I$  est *uniforme* dans l'inclusion et  $\boldsymbol{\varepsilon}_I = \boldsymbol{\zeta} \boldsymbol{\varepsilon}_I^L$ , où  $\boldsymbol{\zeta}$  est le *tenseur d'Eshelby* qui ne dépend que du tenseur d'élasticité du milieu ( $\mathcal{C}^{el}_{\Omega}$ ), de la forme et du rapport d'élancement de l'inclusion (mais pas explicitement de chacune de ses dimensions). Et  $\boldsymbol{\sigma}_I = \mathcal{C}^{el}_{\Omega} (\boldsymbol{\varepsilon}_I - \boldsymbol{\varepsilon}_I^L) = \mathcal{C}^{el}_{\Omega} (\mathbf{I} - \boldsymbol{\zeta}^{-1}) \boldsymbol{\varepsilon}_I = -\mathcal{C}^* \boldsymbol{\varepsilon}_I$ . Le tenseur  $\mathcal{C}^* = \mathcal{C}^{el}_{\Omega} (\boldsymbol{\zeta}^{-1} - \mathbf{I})$  est appelé tenseur d'influence de Hill ; il caractérise la réaction qu'exerce le milieu infini  $\Omega$  sur l'inclusion I.

Ce résultat peut être étendu. Le domaine infini  $\Omega$  a un comportement *linéaire* et est soumis à l'infini à un champ de contraintes *uniforme*  $\boldsymbol{\Sigma}_0$ , le champ de déformation uniforme associé est noté  $\mathbf{E}_0$  ( $\boldsymbol{\Sigma}_0 = \mathcal{C}^0(\mathbf{E}_0)$ ). L'inclusion I, a un comportement *quelconque*, ( $\boldsymbol{\sigma}_I = \mathbf{F}^I(\boldsymbol{\varepsilon}_I)$ ). La loi d'interaction est

alors la suivante :  $\boldsymbol{\sigma}_1 - \boldsymbol{\Sigma}_0 = -\mathcal{C}^* (\boldsymbol{\varepsilon}_1 - \mathbf{E}_0)$ , où  $\mathcal{C}^*$  désigne toujours le tenseur d'influence (dépendant de  $\mathcal{C}^0$ ).

Dans les agrégats polycristallins, chaque phase (ou grain) joue le même rôle. Il n'est alors pas possible de distinguer une matrice (au sens des composites). Compte tenu de la description incomplète de la microstructure de VER (et notamment de la distribution spatiale des phases), les interactions intergranulaires (entre phases) peuvent être modélisées en considérant que chacune des phases (représentée par une « inclusion ») est tour à tour plongée dans une « matrice » infinie dont le comportement mécanique est celui du milieu homogène équivalent (MHE) que l'on cherche justement à évaluer. La loi de localisation est alors obtenue par la résolution du problème mécanique « équivalent » (sur le principe de l'inclusion d'Eshelby). La figure V-10 résume l'approche autocohérente telle que nous venons de la décrire.





de Hill, fonction de  $l_g$  et  $l$ . La détermination du comportement global du MHE se fait alors pas à pas par la résolution d'un problème intégral (comme en élasticité).

Le modèle de Hill a ouvert la voie à de nombreuses approches autocohérentes du polycristal dans le cadre de l'élastoplasticité, de la viscoplasticité et de l'élastoviscoplasticité, afin de prendre en compte les hétérogénéités mécaniques régnant à l'intérieur des phases (en linéarisant le comportement local de manière différente). Soulignons qu'il est possible d'établir théoriquement des bornes (comportement extrémal) dans le cadre de l'élastoplasticité et de la viscoplasticité et ainsi de déterminer le domaine de validité d'un modèle. C'est un problème toujours ouvert pour un comportement viscoélastique ou élastoviscoplastique, cadre où se place notre modélisation mécanique du Zircaloy-4 détendu.

### 3.1.3 Étape d'homogénéisation

Les méthodes classiques d'homogénéisation sont alors utilisées pour permettre la détermination du comportement macroscopique recherché connaissant les grandeurs microscopiques. Ces méthodes consistent en des opérations de moyenne à l'échelle du VER, via l'utilisation de la fonction de distribution des orientations cristallines dans le cadre du schéma autocohérent.

### 3.1.4 Notations

1. Par la suite,  $G$  désignera l'ensemble des phases de l'agrégat prises en compte dans la fonction de distribution des orientations cristallines (FDOC). L'indice « g » sera utilisé pour indexer indifféremment les grandeurs (microscopiques) définies à l'échelle d'un grain ( $g \in G$ ).
2.  $S$  désigne l'ensemble des systèmes de glissement cristallographiques (généralement regroupés par familles de systèmes) susceptibles d'être activés au cours de la déformation plastique. L'exposant « (s) » désignera une grandeur (microscopique) définie pour un système de glissement particulier  $s$ ,  $s \in S$ .
3. Le tableau suivant répertorie les notations utilisées pour quelques grandeurs macroscopiques et leur équivalent microscopique.

TABLEAU V-5. Grandeurs mécaniques microscopiques et macroscopiques. Notations.

Grandeur mécanique	Échelle macroscopique	Échelle microscopique
Contrainte	$\Sigma$	$\sigma_g$
Déformation (totale)	$E$	$\epsilon_g$
Déformation élastique	$E^{el}$	$\epsilon_g^{el}$
Déformation viscoplastique	$E^{vp}$	$\epsilon_g^{vp}$
Vitesse de déformation viscoplastique	$\dot{E}^{vp}$	$\dot{\epsilon}_g^{vp}$
Autre grandeur	$A$	$a_g$

## 3.2 ÉTAPE D'HOMOGENÉISATION

L'homogénéisation a pour but de déterminer, par une opération de moyenne, la grandeur macroscopique  $A$  connaissant, pour chacune des phases du matériau, la grandeur microscopique correspondante  $a_g$ . Pour la contrainte  $\Sigma$  et la déformation totale  $E$ , ce passage grandeur microscopique- grandeur macroscopique correspond simplement au calcul de la moyenne :

$$\langle \circ \rangle_{VER} = \frac{1}{V_{VER}} \int_{VER} \circ d\Omega, \text{ soit } \Sigma = \langle \sigma_g \rangle_{VER} = \sum_{g \in G} f_g \sigma_g \text{ et } E = \langle \epsilon_g \rangle_{VER} = \sum_{g \in G} f_g \epsilon_g.$$

Dans le cadre d'un schéma autocohérent, le passage micro-macro se fait grâce à l'utilisation de la FDOC. Chaque phase  $g \in G$  est définie par son orientation, donnée par les trois angles d'Euler  $(\phi_1, \phi, \phi_2)_g$  et sa fraction volumique  $f_g$ . On supposera, par la suite, que les fractions volumiques sont normées :  $\sum_{g \in G} f_g = 1$ . La moyenne spatiale se calcule alors par  $\langle \circ \rangle_{\text{VER}} = \sum_{g \in G} f_g \circ$ .

Il est important de noter qu'en général une grandeur macroscopique n'est pas égale à la moyenne spatiale de la grandeur microscopique correspondante, à l'exception de la contrainte et de la déformation). De plus, sauf cas particuliers,  $\langle \mathbf{a}_g + \mathbf{b}_g \rangle_{\text{VER}} \neq \langle \mathbf{a}_g \rangle_{\text{VER}} + \langle \mathbf{b}_g \rangle_{\text{VER}}$ . Cette non-égalité est notamment vérifiée pour les parties élastique et plastique de la déformation  $\boldsymbol{\epsilon}_g = \boldsymbol{\epsilon}_g^{\text{el}} + \boldsymbol{\epsilon}_g^{\text{vp}}$ .

Cependant, pour les alliages de zirconium, l'élasticité à l'échelle des grains peut être considérée comme isotrope (du moins en première approche). En fait, les alliages de zirconium présentent une faible anisotropie qu'il est courant de ne pas prendre en compte.

Dans ce cas, la déformation élastique macroscopique  $\mathbf{E}^{\text{el}}$  est la moyenne des déformations élastiques dans chaque phase  $\boldsymbol{\epsilon}_g^{\text{el}}$ .

$$\mathbf{E}^{\text{el}} = \langle \boldsymbol{\epsilon}_g^{\text{el}} \rangle_{\text{VER}} = (\mathbf{C}^{\text{el}})^{-1} \boldsymbol{\Sigma},$$

avec  $\mathbf{C}^{\text{el}}$  tenseur d'élasticité isotrope du matériau, caractérisé par le module d'Young  $E$  du matériau et son coefficient de Poisson  $\nu$ .

La déformation et la vitesse de déformation viscoplastiques sont alors données simplement par la moyenne des grandeurs microscopiques respectives :

$$\mathbf{E}^{\text{vp}} = \langle \boldsymbol{\epsilon}_g^{\text{vp}} \rangle_{\text{VER}} = \sum_{g \in G} f_g \boldsymbol{\epsilon}_g^{\text{vp}} \quad \text{et} \quad \dot{\mathbf{E}}^{\text{vp}} = \langle \dot{\boldsymbol{\epsilon}}_g^{\text{vp}} \rangle_{\text{VER}} = \sum_{g \in G} f_g \dot{\boldsymbol{\epsilon}}_g^{\text{vp}}.$$

### 3.3 CHANGEMENT D'ÉCHELLE : ÉTAPE DE CONCENTRATION

Ce changement d'échelle consiste à relier les grandeurs macroscopiques ( $\boldsymbol{\Sigma}$ ,  $\mathbf{E}$ ,  $\mathbf{E}^{\text{vp}}$ ) aux grandeurs locales au niveau du grain (ici, la contrainte  $\boldsymbol{\sigma}_g$ ). Nous allons décrire ici les lois utilisées, premièrement, dans notre modélisation polycristalline et, deuxièmement, pour conduire l'identification de ce modèle.

#### Loi B-Z

Ce modèle a été développé par Berveiller et Zaoui [1979] et constitue une version simplifiée de l'approche de Hill (décrits au paragraphe 3.1.2). Il s'agit d'un modèle autocohérent intégrant un comportement élastoplastique de la « matrice » (MHE), comportement de type Hencky-Mises, soumise à une déformation plastique uniforme  $\mathbf{E}^{\text{p}}$  (à l'infini).

Les hypothèses associées à ce modèle sont les suivantes :

- chargement radial et monotone,
- grains (ou phases) équiaxes (sphères),
- texture du matériau isotrope.

La loi d'interaction phase/MHE s'écrit :  $\boldsymbol{\sigma}_g = \boldsymbol{\Sigma} + 2\mu (1 - S_{\text{BZ}}) \alpha_{\text{BZ}} (\mathbf{E}^{\text{p}} - \boldsymbol{\epsilon}_g^{\text{p}})$ .

Le terme  $S_{\text{BZ}} = \frac{2}{15} \frac{4-5\nu}{1-\nu}$  est lié au tenseur d'Eshelby d'une inclusion sphérique et  $\alpha_{\text{BZ}}$  est un coefficient d'accommodation plastique qui décroît (de 1 vers  $10^{-2}$ ) lorsque la déformation plastique cumulée  $\|\mathbf{E}^{\text{p}}\|$  augmente ( $1/\alpha_{\text{BZ}} = 1 + \frac{3}{2}\mu \|\mathbf{E}^{\text{p}}\|/J_2(\boldsymbol{\Sigma})$ ).

Ce modèle est limité à l'élastoplasticité pour des chargements radiaux monotones. Dans le cas de l'élastoviscoplasticité et/ou pour des sollicitations cycliques, il est nécessaire d'utiliser une autre règle de localisation.

*Loi en  $\beta$* 

La règle dite « loi en  $\beta$  », utilisée pour décrire les interactions mécaniques entre le MHE et les différentes phases, a été développée par Pilvin [1990, 1996] et est dérivée du modèle de Kröner [1961]. Afin d'améliorer la description de l'évolution de l'accommodation non linéaire entre chaque phase et le MHE au cours du chargement, notamment pour des sollicitations cycliques, des variables internes microscopiques notées  $\beta_g$  ont été introduites, variables donnant son nom à la règle.

La règle de concentration est alors la suivante :

$$\sigma_g = \Sigma + C^{el} (I - S)(B - \beta_g) \text{ avec } B = \langle \beta_g \rangle_{VER} = \sum_{g \in G} f_g \beta_g .$$

$S$  est le tenseur d'Eshelby, tel que décrit au paragraphe 3.1.2, qui permet de prendre en compte la forme des grains (ellipsoïdale dans le cas du Zircaloy-4 détendu).

Nous retrouvons bien que  $\Sigma = \langle \sigma_g \rangle_{VER} = \sum_{g \in G} f_g \sigma_g$ , puisque l'élasticité est homogène et isotrope.

L'évolution de la variable d'accommodation  $\beta_g$  (tenseur déviatorique) est contrôlée par la déformation viscoplastique microscopique  $\epsilon_g^{vp}$  et par un terme de rappel tendant à homogénéiser la contrainte  $\sigma_g$  au fur et à mesure que les déformations croissent :

$$\dot{\beta}_g = \dot{\epsilon}_g^{vp} - D \dot{p}_g (\beta_g - \delta \epsilon_g^{vp}), \beta_{g(t=0)} = 0, \text{ avec } \dot{p}_g = \|\dot{\epsilon}_g^{vp}\| = \sqrt{\frac{2}{3} \dot{\epsilon}_g^{vp} : \dot{\epsilon}_g^{vp}},$$

$\dot{p}_g$  est la vitesse de déformation intragranulaire viscoplastique équivalente.

Dans cette loi heuristique, deux nouveaux coefficients ( $D$ ,  $\delta$ ) ont été introduits. La détermination de leurs valeurs s'effectue au cours de l'identification des paramètres du modèle polycristallin, afin d'assurer l'autocohérence du schéma utilisant la règle en  $\beta$ . Notons que le modèle de Kröner correspond au cas  $D = 0$  ( $\beta_g = \epsilon_g^p$ )

*Conditions d'autocohérence*

Pour approcher l'autocohérence de la démarche d'homogénéisation, on ajuste les coefficients  $D$  et  $\delta$  de la loi d'évolution des variables  $\beta_g$ . Il serait nécessaire en toute rigueur de modéliser le comportement mécanique de *chacune* des phases plongées dans le MHE (démarche autocohérente) à l'aide d'une modélisation par éléments finis et de comparer les résultats ainsi obtenus avec ceux déduits de la loi en  $\beta$ . Cette démarche reste, à l'heure actuelle, trop lourde à mettre en œuvre. Toutefois, elle peut être utilisée, sur quelques orientations, pour valider les coefficients  $D$  et  $\delta$  obtenus par la démarche simplifiée décrite ci-dessus.

Pour identifier ces coefficients, une autre démarche numérique plus souple a été adoptée afin d'assurer au mieux l'autocohérence du schéma [Forest 1996, Vogel 1996]. Pour cela, il suffit, au cours de l'identification, de comparer les résultats obtenus par la loi en  $\beta$  et par le modèle autocohérent B-Z, en se plaçant dans les hypothèses de ce dernier modèle. D'un point de vue pratique, pour un polycristal possédant une texture isotrope et composé de grains sphériques, les réponses locales (contrainte et déformation), sur un nombre fixé d'orientations du polycristal, issues de la simulation d'un essai de traction monotone pour chacun des deux modèles sont comparées et fournissent un critère de respect des conditions d'autocohérence, qu'il s'agit de minimiser au cours de la détermination des coefficients.

Pour notre étude, nous simulons un essai de traction axiale (axe du tube) à une vitesse de déformation macroscopique axiale de  $2.10^{-4} \text{ s}^{-1}$  en limitant la déformation  $E_{zz}$  à 2 % (hypothèse des petites déformations). Nous analysons ensuite les réponses obtenues pour *dix* orientations particulières de la texture isotrope (qui en compte 240) et comparons alors la composante axiale de la déformation ( $\epsilon_{gzz}$ ) et de la contrainte ( $\sigma_{gzz}$ ) pour chaque modèle.

Les conditions d'autocohérence se traduisent par :

$$\text{À tout instant, pour chaque orientation } \omega, \sigma_{\omega zz}^{(B-Z)} = \sigma_{\omega zz}^{(\beta)} \text{ et } \varepsilon_{\omega zz}^{(B-Z)} = \varepsilon_{\omega zz}^{(\beta)}.$$

Ceci nous permet également d'évaluer les hétérogénéités de déformation et contrainte régnant au sein du polycristal.

### 3.4 COMPORTEMENT INTRAGRANULAIRE DES ALLIAGES DE ZIRCONIUM

Dans ce paragraphe, nous présentons la modélisation mécanique que nous avons retenue pour décrire le comportement élastoviscoplastique d'un grain (phase) en introduisant les mécanismes physiques à l'origine de l'écoulement viscoplastique de ce grain. Nous nous placerons, dans la suite, à l'intérieur d'un grain  $g$ , en oubliant temporairement que ce dernier est au sein d'un agrégat polycristallin. C'est pourquoi nous omettons l'indice  $g$ . Rappelons toutefois que, dans la représentation que nous avons choisie, un grain désigne en réalité tout grain du VER ayant la même orientation donnée par la FDOC.

#### *Déformation intragranulaire*

Dans le cadre des petites déformations, la déformation microscopique est décomposée en une partie élastique et une partie viscoplastique :

$$\boldsymbol{\varepsilon}_g = \boldsymbol{\varepsilon}_g^{el} + \boldsymbol{\varepsilon}_g^{vp} \text{ et } \boldsymbol{\sigma}_g = \mathcal{C}^{el} \boldsymbol{\varepsilon}_g^{el}.$$

Dans le cadre de notre étude, à la température de 350 °C, seul le glissement cristallographique est à l'origine de la déformation plastique au niveau de chaque grain. Le mouvement des dislocations ne s'effectue que par glissement dans des plans cristallographiques particuliers ( $s$ ) de la maille cristalline, définis par leur normale unitaire  $\vec{n}^{(s)}$ , et suivant des directions cristallographiques bien définies par leur vecteur unitaire  $\vec{l}^{(s)}$ , orthogonal à  $\vec{n}^{(s)}$  et relié au vecteur de Burgers du système ( $s$ )  $\vec{b}^{(s)} = b^{(s)} \vec{l}^{(s)}$ . L'orientation de chaque système de glissement ( $s$ ) par rapport au repère cristallographique de la maille cristalline, est caractérisée par le tenseur d'orientation<sup>2</sup>, tenseur symétrique, défini par :  $\mathbf{m}^{(s)} = \frac{1}{2}(\vec{l}^{(s)} \otimes \vec{n}^{(s)} + \vec{n}^{(s)} \otimes \vec{l}^{(s)})$ .

La vitesse de déformation viscoplastique microscopique (moyenne dans le grain) est donnée par la contribution des vitesses de glissement  $\dot{\gamma}_g^{(s)}$  (scalaire) de chacun des systèmes potentiellement activables ( $s \in S$ ) :

$$\dot{\boldsymbol{\varepsilon}}_g^{vp} = \sum_{s \in S} \dot{\gamma}_g^{(s)} \mathbf{m}_g^{(s)}.$$

#### *Critère de plasticité*

Comme nous l'avons rappelé au paragraphe 2.4, dans les alliages de zirconium, les modes de déformation pouvant être activés sont au nombre de 24, regroupés en quatre familles :

- glissements prismatiques  $\text{Pri}\langle a \rangle$ , basals  $\text{Bas}\langle a \rangle$  et pyramidaux de 1<sup>re</sup> espèce  $\pi_1\langle a \rangle$ , dont le vecteur de Burgers est inclus dans le plan de base et de norme identique  $b^{(s)} = a$  ;
- glissements  $\pi_1\langle c+a \rangle$  activables pour accommoder les déformations plastiques suivant l'axe  $\langle c \rangle$  de la maille hexagonale.

Le critère de plasticité définit l'activation du glissement d'un système. Nous avons retenu la loi de Schmid et Boas. Bien que cette loi soit discutée dans le cas des métaux à structure hexagonale compacte (Ti, Zr), nous l'utiliserons à défaut, car il n'existe pas à notre connaissance d'autres critères satisfaisants.

Selon cette loi, un système ( $s$ ) est considéré actif si la cisssion réduite  $\tau^{(s)}$  sur ce système est supérieure à une cisssion critique  $\tau_c^{(s)} : |\tau^{(s)}| \geq \tau_c^{(s)}$ .

<sup>2</sup> Le tenseur d'orientation du système ( $s$ ) peut être transporté dans le repère d'étude, en tenant compte de l'orientation du grain donnée par la FDOC, ce qui explique que ce tenseur est parfois indicé avec l'indice  $g$ .

La cission réduite correspond à la projection de la contrainte microscopique sur le plan de glissement du système (s) considéré, suivant la direction de glissement, projection s'exprimant simplement à l'aide du tenseur d'orientation de Schmid :

$$\tau^{(s)} = (\boldsymbol{\sigma}_g \cdot \vec{n}^{(s)}) \cdot \vec{l}^{(s)} = \boldsymbol{\sigma}_g : \mathbf{m}^{(s)}.$$

Afin de tenir compte des hétérogénéités intragranulaires qui peuvent apparaître et évoluer au cours de la déformation plastique, nous avons introduit une contrainte interne (tensorielle)  $\mathbf{X}_g$  qui correspond aux interactions à longue distance s'opposant au mouvement des dislocations. La cission réduite s'exprime alors par  $\tau^{(s)} = (\boldsymbol{\sigma}_g - \mathbf{X}_g) : \mathbf{m}^{(s)}$ .

De par la microstructure initiale du Zircaloy-4 détendu, la prise en compte de cet écrouissage intragranulaire s'avère indispensable.

#### *Loi d'écoulement viscoplastique intragranulaire*

Il s'agit ici de relier la vitesse de glissement  $\dot{\gamma}^{(s)}$  à la cission réduite s'exerçant sur ce système (s). Il existe diverses formulations pour décrire cette loi d'écoulement. Pour notre étude, nous utiliserons une formulation viscoplastique basée sur la théorie des processus thermiquement activés [Geyer 1996] ; quelques rappels sur cette théorie sont disponibles à l'annexe V-A. On parle alors plutôt de cission effective que de cission réduite ( $\tau_{\text{eff}}^{(s)} = \tau^{(s)}$ )

La loi d'écoulement sur un système (s) s'écrit :

$$\dot{\gamma}^{(s)} = 2 \dot{\gamma}_0^{(s)} \sinh \left( \frac{(|\tau_{\text{eff}}^{(s)}| - \tau_c^{(s)}) V_a^{(s)}}{k_B T} \right) \text{signe}(\tau_{\text{eff}}^{(s)}) \text{ si } |\tau_{\text{eff}}^{(s)}| \geq \tau_c^{(s)} \text{ 0, sinon } \dot{\gamma}^{(s)} = 0.$$

$V_a^{(s)}$  désigne le volume d'activation du système (s) que nous écrirons sous la forme  $V_a^{(s)} = V_0^{(s)} b^{(s)3}$ . Le terme  $\dot{\gamma}_0^{(s)}$  est en toute rigueur dépendant de la température, constante dans notre étude, et de la densité de dislocations mobiles  $\rho_m$  (voir annexe V-A). Nous le supposons, par manque d'informations sur l'évolution de  $\rho_m$ , constant. Toutefois, compte tenu de la forte densité initiale de dislocations du matériau détendu, on peut supposer que les variations de  $\rho_m$  au cours de la déformation seront peu importantes, ce qui ne serait pas le cas des alliages de zirconium recristallisés.

La loi d'écoulement viscoplastique intègre les évolutions de l'écrouissage intragranulaire via la contrainte interne  $\mathbf{X}_g$  et au travers de la cission critique.

#### *Écrouissage intragranulaire*

Il est nécessaire de tenir compte, au cours de la déformation, de l'évolution de l'écrouissage du matériau liée, d'une part, à la multiplication des dislocations et de leurs interactions (contribution à  $\tau_c^{(s)}$ ) et, d'autre part, aux modifications de la microstructure (contrainte interne  $\mathbf{X}_g$ )

#### *Contrainte interne et écrouissage*

Nous avons choisi une loi phénoménologique de type Armstrong-Frederick, utilisée classiquement pour modéliser l'écrouissage cinématique dans de nombreux modèles macroscopiques, afin de décrire les évolutions de la contrainte interne :

$$\mathbf{X}_g = 2\mu c_{ig} \boldsymbol{\alpha}_g, \quad \dot{\boldsymbol{\alpha}}_g = \dot{\boldsymbol{\epsilon}}_g^{vp} - d_{ig} \dot{\rho}_g \boldsymbol{\alpha}_g - \left[ \frac{J_2(\mathbf{X}_g)}{M} \right]^m \boldsymbol{\alpha}_g.$$

Nous avons intégré un terme de restauration statique pouvant modéliser la restauration de la microstructure et la relaxation des contraintes internes.

#### *Écrouissage et cission critique*

Il est nécessaire d'explicitier les lois d'évolution des cissions critiques traduisant l'écrouissage du matériau. Il existe multiples démarches s'attachant plus ou moins à la physique des phénomènes impliqués.

- Les approches purement phénoménologiques (par exemple [Cailletaud 1987]) où l'écrouissage est décrit comme pour les modèles macroscopiques, la cission critique d'un système dépendant du (ou des) glissement(s) cumulé(s)  $\theta^{(s)}$  des autres systèmes.
- Les approches introduisant les densités de dislocations comme variables d'écrouissage [Mecking et Kocks 1981, Tabourot 1992]. Il est alors possible d'intégrer des informations quantitatives obtenues par observations microscopiques (MET).

Ces dernières approches ont été (et sont toujours) largement étudiées et confrontées à l'expérience dans le cas des matériaux à structure cristalline cubique centrée ou cubique à faces centrées. Par contre, elles sont à l'heure actuelle peu nombreuses pour les matériaux à maille hexagonale. Ainsi, les lois que nous avons utilisées restent à valider dans le cas des matériaux à structure hexagonale.

L'écrouissage d'un matériau a pour origine la multiplication des dislocations au cours de la déformation et leurs interactions avec l'environnement mécanique : autres dislocations dans le même plan de glissement, dislocations perçant le plan de glissement (« arbres de la forêt »), défauts, précipités... Afin de nous rapprocher de la physique des phénomènes impliqués, nous avons introduit la densité de dislocations  $\rho^{(s)}$  de chaque système de glissement (grandeurs moyennes par phase), afin de décrire l'évolution de la cission critique  $\tau_c^{(s)}$ .

Là encore, un nombre de lois important est disponible pour prendre en compte l'autoécrouissage et l'écrouissage latent (durcissement par des systèmes non activés). Ces interactions entre dislocations sont, en général, modélisées à l'aide d'une matrice d'écrouissage.

Nous avons retenu une formulation simple, dite de Taylor, qui relie la cission critique  $\tau_c^{(s)}$  à la densité de dislocations totale  $\rho^{\text{tot}}$  (ce qui correspondrait à la cission critique de glissement d'une dislocation parmi les « arbres de la forêt ») :

$$\tau_c^{(s)} = \tau_0^{(s)} + A_0^{(s)} \mu b^{(s)} \sqrt{\sum_{u \in S} \rho^{(u)}} = \tau_0^{(s)} + A_0^{(s)} \mu b^{(s)} \sqrt{\rho^{\text{tot}}} ,$$

où  $\tau_0^{(s)}$  est la contrainte de friction du réseau (à ne pas confondre avec la cission critique initiale  $\tau_{c \text{ ini}}^{(s)}$ ),  $A_0^{(s)}$  est un coefficient compris entre 0 et 1.

Dans cette formulation, les interactions entre les systèmes sont traitées de manière identique. Il est possible d'introduire une matrice d'écrouissage pour tenir compte d'interactions différentes entre les systèmes (s) et (r) :

$$\tau_c^{(s)} = \tau_0^{(s)} + A_0^{(s)} \mu b^{(s)} \sqrt{\sum_{r \in S} H^{(s)(r)} \rho^{(r)}} , \text{ avec } H^{(s)(s)} = 1 \text{ et } H^{(s)(u)} \geq 1 \text{ si } (s) \neq (u).$$

Dans le cas des alliages de zirconium, des tentatives pour introduire une matrice d'écrouissage ont été effectuées par :

- Renouard [1999] pour le Zircaloy-4 détendu à 20 °C  $H^{(s)(s)} = 1$  et  $H^{(s)(u)} = \frac{1}{q} - 1$ ,  $0 < q < \frac{1}{2}$ .
- Geyer [1999] pour le Zircaloy-4 recristallisé à 20 °C. La matrice  $H^{(u)(s)}$  comprend trois termes  $H_{aa}$ ,  $H_{ac}$  et  $H_{cc}$  qui traduisent les interactions entre les systèmes de glissement de vecteur de Burgers respectifs ( $\langle a \rangle$  et  $\langle a \rangle$ ), ( $\langle a \rangle$  et  $\langle c+a \rangle$ ) et ( $\langle c+a \rangle$  et  $\langle c+a \rangle$ ).

Mais ne disposant que de peu d'informations dans notre domaine d'étude, nous avons préféré nous contenter d'une formulation simple, afin de ne pas multiplier les paramètres à identifier, dont nous ne pourrions d'ailleurs pas évaluer la validité, surtout dans le cas des matériaux irradiés.

Il nous reste maintenant à écrire l'évolution des densités de dislocations au cours de la déformation :

$$\dot{\rho}^{(s)} = \frac{|\dot{\gamma}^{(s)}|}{b^{(s)}} \left( \frac{1}{L^{(s)}} - G_0^{(s)} b^{(s)} \rho^{(s)} \right), \rho^{(s)}_{(t=0)} = \rho_0^{(s)},$$

$\rho_0^{(s)}$  est la densité initiale de dislocations du système (s).

Cette loi [Tabourot 1992, Estrin 1996], possédant des justifications physiques, comprend deux termes. Le premier terme traduit la production de dislocations au cours de la déformation ( $|\dot{\gamma}^{(s)}| > 0$ ) suivant la loi d'Orowan et dépendant du libre parcours moyen  $L^{(s)}$  d'une dislocation. Le second terme, quant à lui, décrit le processus dynamique d'annihilation de dislocations au cours de leur mouvement ;  $G_0^{(s)} b^{(s)}$  représente la distance critique d'annihilation.

Remarques :

1. Cette loi permet de décrire la saturation de la densité de dislocations sur un système et ainsi celle de l'écrouissage avec la déformation plastique. En effet, lorsque  $1/\rho^{(s)} = L^{(s)} G_0^{(s)} b^{(s)}$ ,  $\dot{\rho}^{(s)} = 0$  et cela quelle que soit la valeur de  $|\dot{\gamma}^{(s)}|$ .
2. Il est possible également d'introduire un terme d'annihilation « statique » ( $-R(\rho^{(s)})$ ), afin de modéliser différents phénomènes physiques tels que la restauration statique (par montée des dislocations...) ou les interactions dynamiques entre dislocations et éléments en insertion (vieillessement dynamique). Dans notre étude, nous avons intégré les phénomènes de restauration et d'évolution de la microstructure à l'aide de la variable interne  $X_g$ . De plus, comme nous le verrons, notre matériau possède une sensibilité à la vitesse de déformation, qui pourrait être qualifiée de « normale », ce qui signifie que les effets de vieillissement dynamique sont moins marqués (contrairement au cas des alliages de zirconium recristallisés).

Il existe différentes formulations pour décrire l'évolution du libre parcours moyen  $L^{(s)}$ .

- $L^{(s)}$  dépend du glissement cumulé  $\theta^{(s)}$  sur le système  $(s)$ , avec  $\theta^{(s)} = \int_0^t |\dot{\gamma}^{(s)}| : L^{(s)} = \lambda_\infty + (\lambda_0 - \lambda_\infty) \exp(-k \theta^{(s)})$  et  $L^{(s)}$  tend vers  $\lambda_\infty$  quand  $\theta^{(s)}$  tend  $\infty$  [Geyer 1999].
- Dans le cas d'interactions dislocations/« arbres de la forêt », le libre parcours moyen s'exprime par :  $L^{(s)} = K / \sqrt{\sum_{u \in S, u \neq s} \rho^{(u)}}$ ,  $K$  est un paramètre du matériau.

La microstructure initiale, fortement écrouie de notre matériau, et également la présence de nombreux précipités répartis uniformément dans la matrice, nous conduisent à l'hypothèse raisonnable que le libre parcours moyen est *constant* (que nous écrirons sous la forme  $L^{(s)} = L_0^{(s)} b^{(s)}$ ).

### 3.5 CONCLUSION

Nous venons de présenter le modèle polycristallin que nous allons utiliser pour obtenir une description complète de l'anisotropie macroscopique du Zircaloy-4 détendu. Rappelons que dans une approche microscopique, l'anisotropie viscoplastique est prise en compte naturellement par l'utilisation de la FDOC du matériau et par une activation différente des systèmes de glissement. Pour mener à bien l'identification de notre modèle, qui est un problème délicat, nous avons réalisé un certain nombre d'hypothèses :

- Élasticité isotrope du matériau ( $E, \nu$ ), que nous n'identifierons pas ;
- La densité de dislocations initiale est identique pour tous les systèmes de glissement ( $\rho_0$ ) ;
- De plus, nous allons supposer que les coefficients ( $\dot{\gamma}_0^{(s)}, V_0^{(s)}, \tau_0^{(s)}, A_0^{(s)}, L_0^{(s)}, G_0^{(s)}$ ) décrivant l'écoulement viscoplastique d'un système de glissement sont constants par famille de glissement.

Dans ce cas, le nombre maximal de coefficients à identifier est de 31. Nous serons amenés à faire d'autres hypothèses, que nous préciserons en temps voulu, afin de réduire ce nombre.

## 4 MODÉLISATION MACROSCOPIQUE DU COMPORTEMENT DU ZIRCALOY-4

L'utilisation d'un modèle polycristallin, tel que décrit au paragraphe précédent, reste délicate, à l'heure actuelle, dans le domaine du calcul de structures<sup>3</sup>. Les modélisations phénoménologiques macroscopiques, à l'échelle du VER, sont toujours d'un usage courant. Dans ce paragraphe, nous allons nous attacher à décrire le modèle tridimensionnel de comportement mécanique anisotrope du Zircaloy-4 détendu que nous utiliserons dans les prochains chapitres lors de l'analyse par éléments finis des essais de corrosion sous contrainte, modèle que nous identifierons au prochain paragraphe suivant la démarche explicitée au paragraphe 1. Ce modèle a initialement été développé par Delobelle [1993] pour décrire le comportement élastoviscoplastique isotrope d'un acier inoxydable. Puis il a été adapté par Robinet [1995] aux alliages de zirconium en introduisant l'anisotropie viscoplastique de ces matériaux (identification du comportement anisotherme du Zircaloy-4 non irradié dans les états métallurgiques détendu et recristallisé) ; les effets de l'irradiation sur le comportement viscoplastique du Zircaloy-4 détendu ont ensuite été pris en compte par Schäffler [1997]. Partant de ces travaux, nous avons développé une version simplifiée de ce modèle, que nous désignerons sous l'acronyme DRS (du nom des auteurs cités ci-dessus), ainsi qu'une autre approche thermodynamique pour décrire le comportement anisotherme de notre alliage de zirconium.

### 4.1 QUELQUES RAPPELS DE THERMODYNAMIQUE DES MILIEUX CONTINUS

La thermodynamique des milieux continus nous fournit un cadre théorique permettant de décrire l'irréversibilité des processus subis par un matériau au cours de sollicitations thermomécaniques et d'étudier les couplages entre les différentes sources de dissipation d'énergie. Plus d'informations sur cette théorie sont disponibles dans [Lemaitre et Chaboche 1985, Coussy 1991].

Dans ce formalisme, où nous nous plaçons à l'échelle macroscopique, l'état thermomécanique actuel du matériau est décrit à l'aide de *variables d'état indépendantes*, réparties en deux groupes : les variables *observables*, mesurables expérimentalement, telles que la déformation  $\mathbf{E}$  et la température absolue  $T$ , et les variables internes (ou cachées), qui décrivent l'état interne actuel du matériau et qui intègrent l'histoire thermomécanique subie par le matériau. Nous n'introduisons pas, dans notre exposé, les effets liés à l'irradiation, qui est une variable observable. Ces dernières variables, notées  $\mathbf{V}_I$ , désignent des variables pouvant être tensorielles, vectorielles ou scalaires. Le choix de ces variables d'état n'est pas unique. Suivant les auteurs, les déformations élastique  $\mathbf{E}^{el}$  et (visco)plastique  $\mathbf{E}^{vp}$  sont soit assimilées à des variables internes, soit uniquement des variables auxiliaires s'exprimant à partir des variables d'états. Nous faisons le choix de ne pas prendre la déformation (visco)plastique comme variable interne ( $\mathbf{E}^{vp} = f(\mathbf{V}_I)$ ) ; en ce qui concerne la déformation élastique  $\mathbf{E}^{el}$ , nous reviendrons sur ce point ultérieurement. Le raisonnement est également valable si les déformations non réversibles ne sont pas décrites par un seul tenseur, mais par plusieurs tenseurs de déformation (modèles à viscoplasticité « non unifiée »).

Dans ce cadre, appelée « méthode de l'état local », il est possible de définir, en chaque point matériel, correspondant ici au VER supposé homogène, deux fonctions d'état<sup>4</sup>, dépendant uniquement des variables d'état ( $\mathbf{E}$ ,  $T$ ,  $\mathbf{V}_I$ ) : l'énergie interne massique  $U_I$  et l'entropie massique  $S$ .

<sup>3</sup> Les durées de calculs et les quantités importantes de données à gérer et à stocker sont considérables lors du calcul d'une structure complète avec un modèle polycristallin, tel que ceux que nous présenterons dans les prochains chapitres. Mais gageons que ces difficultés ne manqueront pas de disparaître à l'avenir.

<sup>4</sup> D'un point de vue mathématique, ces fonctions sont des différentielles totales exactes. Leurs variations entre deux états quelconques s'expriment uniquement comme la différence des valeurs prises dans ces deux états et sont indépendantes de la transformation choisie pour aller d'un état à l'autre.



La forme locale du premier principe de la thermodynamique, traduisant la conservation de l'énergie, et du deuxième principe, définissant les transformations thermodynamiquement admissibles pour un système, conduit à l'inégalité de Clausius-Duhem suivante.

$$\text{en petites déformations, } \phi = -\rho \left( \frac{d}{dt} U_I - T \frac{d}{dt} S \right) + \boldsymbol{\Sigma} : \dot{\mathbf{E}} - \frac{1}{T} \vec{q} \cdot \overrightarrow{\text{grad}}(T) \geq 0,$$

où  $\vec{q}$  est le vecteur flux de chaleur, correspondant aux échanges locaux de chaleur entre le volume élémentaire considéré et son environnement, et  $\rho$  la masse volumique.

Cette inégalité traduit que la dissipation volumique  $\phi$  est une grandeur toujours positive au cours d'une transformation (ou nulle si cette dernière est réversible). Nous supposons que les sources de dissipation intrinsèque ( $\phi_m$ ) et thermique ( $\phi_{th}$ ) sont découplées, ce qui n'implique pas que les phénomènes soient eux-mêmes découplés ; l'inégalité de Clausius-Duhem s'écrit alors :

$$\phi_m = -\rho \left( \frac{d}{dt} U_I - T \frac{d}{dt} S \right) + \boldsymbol{\Sigma} : \dot{\mathbf{E}} \geq 0 \text{ et } \phi_{th} = -\frac{1}{T} \vec{q} \cdot \overrightarrow{\text{grad}}(T) \geq 0.$$

On introduit souvent l'énergie libre massique de Helmholtz  $F = U_I - TS$  qui est également une fonction d'état et dont les variations correspondent aux quantités d'énergie échangées au cours d'une transformation. La connaissance de  $F(\mathbf{E}, T, \mathbf{V}_I)$  permet de définir les forces thermodynamiques, variables duales des variables d'état (ces relations définissent les équations d'état) :

$$S = -\frac{\partial F}{\partial T}, \quad \boldsymbol{\Sigma} = \rho \frac{\partial F}{\partial \mathbf{E}}, \quad \mathbf{L}_I = \rho \frac{\partial F}{\partial \mathbf{V}_I} \text{ et } \rho \frac{d}{dt} F = -\rho S \dot{T} + \boldsymbol{\Sigma} : \dot{\mathbf{E}} + \mathbf{L}_I : \dot{\mathbf{V}}_I.$$

L'inégalité de Clausius-Duhem se réduit à :  $-\mathbf{L}_I : \dot{\mathbf{V}}_I \geq 0$ .

La dissipation intrinsèque ne s'exprime alors qu'en fonction des variables internes  $\mathbf{V}_I$ .

La stabilité thermodynamique d'un matériau, définie par l'existence d'états d'équilibre stables et de leur unicité, implique que l'énergie libre  $F$  est fonction concave de la température  $T$  et convexe par rapport à toutes les autres variables d'état. De plus, il existe un état de référence (équilibre non contraint) pour lequel cette fonction est minimale. En général la fonction  $F$  est identifiée avec une forme quadratique, définie positive, des variables d'état (assurant la « convexité » de la fonction), résultant d'un développement de Taylor (à l'ordre 2) de la fonction  $F$  autour de la position d'équilibre de référence. L'hypothèse d'un découplage des effets dissipatifs liés à la thermoélasticité et à la thermo(visco)plasticité conduit à partitionner la fonction  $F$  en deux termes  $F^{el}$  et  $F^{vp}$ , vérifiant chacun les hypothèses de « convexité ». Le potentiel thermoélastique  $F^{el}$  n'est fonction que de la partie réversible des déformations  $\mathbf{E}$ , le potentiel thermo(visco)plastique  $F^{vp}$  ne dépendant que des variables internes  $\mathbf{V}_I$  et de la température  $T$ .

Avec l'hypothèse des petites perturbations, il est courant de partitionner la déformation  $\mathbf{E}$  en parties élastique  $\mathbf{E}^{el}$ , (visco)plastique  $\mathbf{E}^{vp}$  et thermique  $\mathbf{E}^{th}$  :  $\mathbf{E} = \mathbf{E}^{el} + \mathbf{E}^{vp}(\mathbf{V}_I) + \mathbf{E}^{th}(T)$ .

Nous voyons alors que les deux variables  $\mathbf{E}$  ou  $\mathbf{E}^{el}$  ne sont pas indépendantes.

Revenons sur le choix des variables d'état. Deux cas sont possibles :

1. Les variables d'état sont  $(\mathbf{E}^{el}, T, \mathbf{V}_I)$ , avec  $\mathbf{E} = \mathbf{E}^{el} + \mathbf{E}^{vp}(\mathbf{V}_I) + \mathbf{E}^{th}(T)$ . L'énergie libre s'exprime par

$$F(\mathbf{E}^{el}, T, \mathbf{V}_I) = F^{el}(\mathbf{E}^{el}, T) + F^{vp}(\mathbf{V}_I, T). \text{ Les équations d'état s'écrivent } \boldsymbol{\Sigma} = \rho \frac{\partial F^{el}}{\partial \mathbf{E}^{el}} = \mathbf{C}^{el}(T) \mathbf{E}^{el},$$

$$S = -\frac{\partial F}{\partial T} = -\frac{\partial F^{el}}{\partial T} - \frac{\partial F^{vp}}{\partial T}, \quad \mathbf{L}_I = \rho \frac{\partial F^{vp}}{\partial \mathbf{V}_I} \text{ et l'inégalité de Clausius-Duhem } \phi = \boldsymbol{\Sigma} : \dot{\mathbf{E}}^{vp} - \mathbf{L}_I : \dot{\mathbf{V}}_I \geq 0.$$

2. Les variables d'état sont  $(\mathbf{E}, T, \mathbf{V}_I)$  et  $\mathbf{E}^{el} = \mathbf{E} - \mathbf{E}^{vp}(\mathbf{V}_I) - \mathbf{E}^{th}(T)$ . L'énergie libre s'exprime par  $F(\mathbf{E}, T, \mathbf{V}_I) = F^{el}(\mathbf{E}, T, \mathbf{V}_I) + F^{vp}(\mathbf{V}_I, T)$ . Les équations d'état s'écrivent

$$\boldsymbol{\Sigma} = \rho \frac{\partial F^{\text{el}}}{\partial \mathbf{E}} = \mathbf{C}^{\text{el}}(T)(\mathbf{E} - \mathbf{E}^{\text{vp}} - \mathbf{E}^{\text{th}}), \quad S = -\frac{\partial F}{\partial T} = -\frac{\partial F^{\text{el}}}{\partial T} - \frac{\partial F^{\text{vp}}}{\partial T}, \quad \mathbf{L}_I = \rho \frac{\partial F^{\text{el}}}{\partial \mathbf{V}_I} + \rho \frac{\partial F^{\text{vp}}}{\partial \mathbf{V}_I} \quad \text{et la}$$

dissipation intrinsèque  $\phi = -\mathbf{L}_I \cdot \dot{\mathbf{V}}_I$ .

Suivant le choix des variables d'état, le calcul des forces thermodynamiques se résume à un jeu d'écriture mathématique plus ou moins périlleux. Toutefois, nous voyons apparaître une dépendance de l'énergie libre thermoélastique (associée aux phénomènes réversibles) avec les variables internes introduites pour décrire les processus irréversibles vus par le matériau. De plus, certaines méthodes expérimentales (diffraction par rayons X, par exemple) nous permettent d'évaluer la partie élastique des déformations. Nous préférons alors retenir le premier choix.

Dans la suite de notre exposé, les variables d'état seront les suivantes :  $\mathbf{E}^{\text{el}}$ ,  $T$ ,  $\mathbf{V}_I$  ; les variables internes seront définies ultérieurement. Nous ne nous intéresserons, dans le prochain paragraphe, qu'à décrire la thermoviscoplasticité des alliages de zirconium via le potentiel  $F^{\text{vp}}$ , la thermoélasticité étant décrite de manière classique.

Dans le formalisme que nous venons brièvement de rappeler, la description du comportement n'est pas complète, puisque nous ne connaissons pas comment évolue l'état interne du matériau lors de diverses sollicitations thermomécaniques, l'évolution des variables internes devant vérifier l'inégalité de Clausius-Duhem ( $\phi \geq 0$ ). Plusieurs approches sont alors possibles.

1. Bon nombre de comportements sont définis dans la « classe des matériaux standards généralisés » à l'aide d'un formalisme très performant. L'évolution des variables internes se déduit de la connaissance d'un pseudopotentiel de dissipation viscoplastique  $\Omega^{\text{vp}}$  dépendant des forces thermodynamiques ( $\boldsymbol{\Sigma}$ ,  $\mathbf{L}_I$ ,  $\text{grad}(T)$ ) :

$$\dot{\mathbf{E}}^{\text{vp}} = \frac{\partial \Omega^{\text{vp}}}{\partial \boldsymbol{\Sigma}}, \quad \dot{\mathbf{V}}_I = -\frac{\partial \Omega^{\text{vp}}}{\partial \mathbf{L}_I} \quad \text{et} \quad \frac{\dot{q}}{T} = -\frac{\partial \Omega^{\text{vp}}}{\partial \text{grad}(T)}.$$

La convexité de pseudopotentiel, qui est minimal dans l'état de référence, assure que l'inégalité de Clausius-Duhem est toujours vérifiée, c'est-à-dire que la dissipation intrinsèque est toujours positive (ou nulle). Le modèle DRS a été développé dans ce formalisme [Robinet 1995, Schäffler 1997], mais les équations décrivant les évolutions anisothermes du matériau sont compliquées (qu'il est alors nécessaire de simplifier avec différentes hypothèses).

2. Le second type d'approche ne postule pas l'existence de ce pseudopotentiel de dissipation. Les lois d'évolution des variables internes sont posées *a priori* et il convient alors de vérifier *a posteriori* que l'inégalité de Clausius-Duhem n'est pas violée au cours des différentes sollicitations subies par le matériau. Notre approche thermodynamique anisotherme rentre dans ce schéma ; sachant que pour des évolutions isothermes, nous retrouverons les équations du modèle DRS.

## 4.2 DESCRIPTION THERMODYNAMIQUE ANISOTHERME DU MODÈLE DRS SIMPLIFIÉ

Nous allons présenter notre approche thermodynamique anisotherme du comportement thermomécanique macroscopique du Zircaloy-4 à l'état détendu en mettant l'accent sur les différentes hypothèses retenues, en comparaison avec celles utilisées par Delobelle, Robinet et Schäffler.

Définissons tout d'abord les variables d'état de notre modèle. Outre les variables observables que sont la partie élastique de la déformation  $\mathbf{E}^{\text{el}}$  et la température  $T$ , nous ne retenons que les deux autres variables internes  $\mathbf{X}$  et  $\mathbf{X}_I$  (variables déviatoriques) servant à décrire l'écrouissage cinématique du matériau ; on notera  $\boldsymbol{\alpha}$  et  $\boldsymbol{\alpha}_I$  les variables d'écrouissage duales. Le tableau V-6 résume les différentes variables du modèle DRS simplifié.

TABLEAU V-6. Variables d'état et forces thermodynamiques du modèle macroscopique.

Variables d'état	$\mathbf{E}^{\text{el}}$	T	$\mathbf{X}$	$\mathbf{X}_1$	<del><math>\mathbf{X}_2</math></del>	<del><math>\mathbf{Y}</math></del>
Variables duales	$\boldsymbol{\Sigma}$	s	$\boldsymbol{\alpha}$	$\boldsymbol{\alpha}_1$	<del><math>\boldsymbol{\alpha}_2</math></del>	<del><math>\mathbf{R}</math></del>

Faisons plusieurs remarques importantes.

- Nous n'avons pas considéré, comme pour le modèle DRS, une troisième variable d'écrouissage cinématique  $\mathbf{X}_2$  ( $\boldsymbol{\alpha}_2$ ). Celle-ci devient importante lorsque l'on considère des niveaux de déformation importants. Comme nous nous limitons à des déformations inférieures à 0,02, les deux variables  $\mathbf{X}$  et  $\mathbf{X}_1$  suffisent à décrire l'écrouissage.
- Nous n'avons pas introduit de variable interne d'écrouissage isotrope  $\mathbf{Y}$ , décrivant l'adoucissement du matériau lors d'essais cycliques. Pour le Zircaloy-4 détendu, les résultats de Robinet [1995] montrent que cet adoucissement est très faible. Schäffler [1997] n'a également pas modélisé cet écrouissage (les coefficients retenus n'entraînent pas d'évolution de la variable  $\mathbf{Y}$  au cours des diverses sollicitations). On notera  $Y_0(T)$  le paramètre du modèle à identifier, modélisant cet écrouissage isotrope.

Afin de décrire l'anisotropie viscoplastique du matériau, notre modèle simplifié ne contient que les trois tenseurs d'anisotropie  $\mathbf{M}$ ,  $\mathbf{N}$  et  $\mathbf{R}$ , décrivant respectivement l'anisotropie de l'écoulement viscoplastique (forme de la surface de charge), de l'écrouissage et de la restauration statique. Comme le suggérait Schäffler [1997] suite à ses travaux, nous avons supposé que la restauration dynamique de l'écrouissage s'effectue suivant les mêmes directions que cet écrouissage (choix  $\mathbf{Q} = \mathbf{N}$ ). Rappelons que notre matériau peut être considéré comme orthotrope (voir paragraphe 2.3). Dans ce repère d'orthotropie, ces tenseurs sont diagonaux ; l'annexe V-B montre le passage de la description (matricielle) retenue par Robinet et Schäffler à la description de l'anisotropie par un tenseur diagonal dans le repère d'orthotropie, représentation que nous utiliserons par la suite.

Explicitons maintenant l'énergie libre de Helmholtz associée à notre modèle<sup>5</sup> :

$$\rho F(\mathbf{E}^{\text{el}}, T, \mathbf{X}, \mathbf{X}_1) = \rho F^{\text{el}}(\mathbf{E}^{\text{el}}, T) + \rho F^{\text{vp}}(\mathbf{X}, \mathbf{X}_1, T) = \rho F^{\text{el}}(\mathbf{E}^{\text{el}}, T) + \frac{2}{9} Y_0(T) [P(T) J_2(\mathbf{X})^2 + P_1(T) J_2(\mathbf{X}_1)^2],$$

où  $P(T)$  et  $P_1(T)$  sont des coefficients liés à l'évolution de l'écrouissage cinématique<sup>6</sup>.

Nous avons alors :  $\boldsymbol{\alpha} = \frac{2}{3} Y_0(T) P(T) \mathbf{X}$  et  $\boldsymbol{\alpha}_1 = \frac{2}{3} Y_0(T) P_1(T) \mathbf{X}_1$ . Sans information particulière, ces différentes variables sont nulles à l'état initial :  $\boldsymbol{\alpha}_{(t=0)} = \boldsymbol{\alpha}_1(t=0) = \mathbf{0}$  et  $\mathbf{X}_{(t=0)} = \mathbf{X}_1(t=0) = \mathbf{0}$ .

Il ne nous reste maintenant plus qu'à décrire l'évolution des différentes variables internes.

L'écoulement viscoplastique est régi par la loi de normalité, où  $F_c(\boldsymbol{\Sigma}, \boldsymbol{\alpha})$  est la fonction de charge dépendant de la partie visqueuse de la contrainte  $\boldsymbol{\Sigma}_v = \mathbf{J}_2^{\text{M}}(\boldsymbol{\Sigma} - \boldsymbol{\alpha})$  prenant en compte l'anisotropie (tenseur  $\mathbf{M}$ ) suivant la forme du critère élastoplastique de Hill. La vitesse de déformation viscoplastique est alors donnée par  $\dot{\mathbf{E}}^{\text{vp}} = \Lambda_p \frac{\partial F_c(\boldsymbol{\Sigma}, \boldsymbol{\alpha})}{\partial \boldsymbol{\Sigma}}$ ,  $\Lambda_p(\boldsymbol{\Sigma}_v)$  joue le rôle du

multiplicateur viscoplastique. Dans le cas du modèle DRS, le critère retenu ne présente pas de seuil,  $F_c(\boldsymbol{\Sigma}, \boldsymbol{\alpha}) = \boldsymbol{\Sigma}_v$ , et la loi donnant  $\Lambda_p$  doit assurer que pour les faibles contraintes le comportement est (quasi)élastique et traduire, dans le domaine des fortes contraintes, une non-linéarité très importante du comportement viscoplastique du Zircaloy-4 détendu.

<sup>5</sup> On rappelle que la notation  $\mathbf{J}_2^{\text{H}}(\mathbf{o})$  désigne la grandeur équivalente suivante  $\sqrt{\frac{3}{2} \mathbf{o}^{\text{d}} : (\mathbf{H} \mathbf{o}^{\text{d}})}$ ,  $\mathbf{o}^{\text{d}}$  désignant le tenseur déviateur. Dans le cas où  $\mathbf{H}$  est le tenseur identité  $\mathbf{I}$ , la notation  $\mathbf{J}_2(\mathbf{o})$  est utilisée.

<sup>6</sup> Contrairement à Robinet et Schäffler, nous n'avons pas de condition sur ces deux coefficients. Pour simplifier les équations décrivant les évolutions anisothermes, la condition  $P_1 \ll P$  était posée par ces deux auteurs.

Nous faisons le choix de décrire les évolutions des variables d'écrouissage par le système d'équations différentielles suivant, ces lois ne dérivant pas d'un pseudopotentiel de dissipation :

$$\dot{\mathbf{X}} = \left[ \mathbf{N} \left( \dot{\mathbf{E}}^{vp} - \Lambda_p (P(T)\mathbf{X} - P_1(T)\mathbf{X}_1) \right) \right]^d - \mathbf{R}(\mathbf{X}) \text{ et } \dot{\mathbf{X}}_1 = \left[ \mathbf{N} \left( \dot{\mathbf{E}}^{vp} - \Lambda_p P_1(T)\mathbf{X}_1 \right) \right]^d,$$

la fonction  $\mathbf{R}(\mathbf{X})$  permet de décrire la restauration statique du matériau, ce terme peut éventuellement dériver d'un potentiel si l'on fait l'hypothèse d'un découplage des sources de dissipation liées à l'écrouissage et à la restauration statique.

### 4.3 SYNTHÈSE DU MODÈLE DRS ISOTHERME

Bien que nous nous soyons intéressés à une description thermodynamique anisotherme du modèle, nous ne l'identifierons qu'à une température donnée (350 °C) ; nous omettrons, afin d'alléger l'écriture des équations, la dépendance des coefficients avec la température (T).

À température constante, nous avons :  $\alpha_{(1)} = \frac{2}{3} Y_0 P_{(1)} \mathbf{X}_{(1)}$  soit  $\dot{\alpha}_{(1)} = \frac{2}{3} Y_0 P_{(1)} \dot{\mathbf{X}}_{(1)}$ .

Nous ne tiendrons pas compte des déformations d'origine thermique  $\mathbf{E}^{th}$ , puisque nous considérons que les déformations  $\mathbf{E}$  sont mesurées à partir de cet état de référence.

Dressons maintenant un bilan des équations du modèle isotherme :

$$\mathbf{E} = \mathbf{E}^{el} + \mathbf{E}^{vp}$$

$$\text{Élasticité } \boldsymbol{\Sigma} = \mathcal{C}^{el} \mathbf{E}^{el}$$

$$\text{Écoulement viscoplastique } \dot{\mathbf{E}}^{vp} = \frac{3}{2} \Lambda_p \frac{[\mathbf{M}(\boldsymbol{\Sigma}^d - \boldsymbol{\alpha})]^d}{J_2^M(\boldsymbol{\Sigma} - \boldsymbol{\alpha})}, \quad \Lambda_p = \dot{\epsilon}_0 \left[ \sinh \left( \frac{J_2^M(\boldsymbol{\Sigma} - \boldsymbol{\alpha})}{N_0} \right) \right]^n$$

$$\text{Écrouissage cinématique (avec } \alpha_{(t=0)} = \alpha_{1(t=0)} = \mathbf{0})$$

$$\dot{\alpha} = P \left[ \mathbf{N} \left( \frac{2}{3} Y_0 \dot{\mathbf{E}}^{vp} - \Lambda_p (\alpha - \alpha_1) \right) \right]^d - r_{m0} \left[ \sinh \left( \frac{J_2^R(\alpha)}{\alpha_0} \right) \right]^{m_0} \frac{[\mathbf{NR} \alpha]^d}{J_2^R(\alpha)}$$

$$\dot{\alpha}_1 = P_1 \left[ \mathbf{N} \left( \frac{2}{3} Y_0 \dot{\mathbf{E}}^{vp} - \Lambda_p \alpha_1 \right) \right]^d$$

Les coefficients du modèle sont (E,  $\nu$ ) pour l'élasticité isotrope, ( $\dot{\epsilon}_0$ ,  $N_0$ ,  $n$ ,  $P$ ,  $P_1$ ,  $Y_0$ ,  $r_{m0}$ ,  $\alpha_0$ ,  $m_0$ ) pour le comportement non linéaire auquel on doit ajouter les trois tenseurs d'anisotropie  $\mathbf{M}$ ,  $\mathbf{N}$  et  $\mathbf{R}$ , définis chacun par six coefficients (en réalité, nous n'en identifions que cinq sur les six, le dernier étant fixé). Nous avons au total 24 coefficients à déterminer pour décrire le comportement viscoplastique du matériau.

Robinet [1995] et Schäffler [1997] ont décrit la restauration statique avec des fonctions différentes de celle que nous avons retenue (loi identique à celle définissant le multiplicateur plastique  $\Lambda_p$ ).

## 5 MODÉLISATION DU COMPORTEMENT MÉCANIQUE DU ZIRCALOY-4 DÉTENDU

Nous allons maintenant exposer les résultats de notre identification du comportement viscoplastique anisotrope du Zircaloy-4 à l'état métallurgique détendu pour la température de 350 °C, température représentative des conditions régnant en réacteur et correspondant à la température de nos essais de corrosion sous contrainte, dont nous parlerons dans les prochains chapitres.

### 5.1 PRÉAMBULE

Faisons tout d'abord quelques remarques préliminaires d'ordre général.

*Élasticité du Zircaloy-4 détendu*

L'élasticité des alliages de zirconium est considérée comme homogène et isotrope. Nous avons fait le choix de ne pas identifier les coefficients d'élasticité du matériau, à savoir son module d'Young  $E$  et son coefficient de Poisson  $\nu$ . Les valeurs retenues, valables aussi bien pour la modélisation micromécanique que pour l'approche macroscopique phénoménologique, sont les suivantes<sup>7</sup> :

$$\text{À } 350\text{ °C, } E = 83500\text{ MPa et } \nu = 0,37.$$

Le bombardement neutronique ne modifie que la viscoplasticité du matériau. Les coefficients d'élasticité ne sont pas fonction de l'irradiation, mais seulement de la température (seul le module d'Young varie, le coefficient de Poisson restant constant).

*Principe des essais mécaniques*

Du fait de la géométrie tubulaire des gaines, et également de la disponibilité en matière issue de crayons combustibles irradiés en REP, les essais de caractérisation du comportement thermomécanique des alliages de zirconium sont réalisés sur des tronçons de tubes. L'essai de pressurisation interne est l'essai le plus utilisé, car considéré comme représentatif des conditions mécaniques vues par la gaine en réacteur, à l'exception des effets locaux liés à l'IPG (cf. chapitre I).

Il est courant, lors du dépouillement des résultats expérimentaux, d'utiliser l'hypothèse des tubes minces compte tenu des dimensions des gaines ; ceci nous permet d'accéder aux champs mécaniques moyens (contrainte et déformation) régnant au sein du tube<sup>8</sup>.

$$\Sigma_{rr} = -\frac{1}{2} p, \quad \Sigma_{\theta\theta} = p \frac{R_i}{e}, \quad \Sigma_{zz} = \alpha \Sigma_{\theta\theta} (\alpha \text{ imposé}) \text{ ou } \Sigma_{zz} = p \frac{R_i^2}{R_e^2 - R_i^2} \text{ (effet de fond),}$$

$$\text{Et les déformations mesurées au cours de l'essai sont } E_{\theta\theta} = \frac{\Delta R_e}{R_e}, \quad E_{zz} = \frac{\Delta L_z}{L_z}.$$

$R_e$  et  $R_i$  désignent respectivement les diamètres extérieur et intérieur du tube, d'épaisseur  $e$  et de longueur axiale  $L_z$ . Dans le cas des essais suivant la direction axiale du tube, les champs mécaniques sont homogènes dans le tube et décrits par les formules classiques.

*Composition chimique et état mécanique initial des matériaux étudiés*

Tous les essais ont, évidemment, été réalisés sur des tubes en Zircaloy-4 (à basse teneur en étain) dans l'état métallurgique détendu. Cependant, sur alliage non irradié, la base expérimentale résulte de la compilation d'essais réalisés, d'une part, à EDF Renardières et, d'autre part, au CEA Saclay. Les compositions chimiques des deux coulées utilisées, bien qu'en accord avec la norme ASTM, diffèrent légèrement, notamment pour la teneur en oxygène. Toutefois, au vu des résultats expérimentaux assez proches pour ces deux nuances, nous conviendrons d'identifier le comportement mécanique de notre alliage sur cette base unifiée.

Rappelons que les gaines irradiées en REP ont subi, en plus du bombardement neutronique, un chargement thermomécanique, ont été corrodées par le fluide caloporteur et hydrurées (la teneur en hydrogène restant toutefois faible jusqu'à deux cycles d'irradiation)<sup>9</sup>. Ces conditions varient

<sup>7</sup> Par comparaison, les valeurs retenues à 350 °C par Robinet [1995] (resp. Schäffler [1997]) sont  $E = 73000\text{ MPa}$  et  $\nu = 0,42$  (resp.  $E = 80000\text{ MPa}$  et  $\nu = 0,32$ ).

<sup>8</sup> Il est également possible d'affiner la méthode de dépouillement en prenant en compte la faible inhomogénéité des champs mécaniques suivant l'épaisseur de la gaine (inférieure à 7 % sur la contrainte circonférentielle) sur le calcul des champs mécaniques moyens [Geyer 1999, Fandeur et Pilvin 2002], mais nous ne l'avons pas fait ici.

<sup>9</sup> Il existe des programmes d'expérimentation où les tronçons de gaine sont mis dans des capsules, placées dans des dispositifs d'irradiation en réacteur expérimental. Les tronçons ne subissent alors aucun chargement thermomécanique, ni corrosion, ni hydruration ; seuls les effets du bombardement neutronique sont vus par le matériau. Mais ces conditions sont très éloignées de celles régnant en REP (problème de représentativité du comportement observé).

le long du crayon combustible et sont alors différentes suivant la position des éprouvettes extraites. L'état thermomécanique des tronçons en fin d'irradiation REP, sur lesquels sont réalisés les essais, n'est donc pas identique. Mais, par manque d'informations, nous ne prendrons pas en compte ces différences et choisirons cet état comme l'état de référence de notre approche thermodynamique décrite au paragraphe précédent, pour mener à bien notre identification du comportement viscoplastique du Zircaloy-4 irradié durant deux cycles REP.

## 5.2 DESCRIPTION ET ANALYSE DE LA BASE EXPÉRIMENTALE SUR ZIRCALOY-4 NON IRRADIÉ ET IRRADIÉ DEUX CYCLES

Nous allons maintenant présenter l'ensemble de la base expérimentale dont nous disposons pour conduire à bien notre identification du comportement élastoviscoplastique du Zircaloy-4 détendu dans l'état non irradié et après irradiation durant deux cycles de fonctionnement en REP. Les tableaux V-7 et V-8 décrivent les différents essais disponibles. Lors de l'analyse des essais, la plus grande déformation mesurée est limitée à 0,02 afin de respecter le cadre de l'hypothèse des petites perturbations.

TABLEAU V-7. Base expérimentale utilisée pour identifier le comportement du Zircaloy-4 à l'état détendu non irradié pour la température de 350 °C.

Description de l'essai	Nombre d'essais (sollicitations imposées)	Origine de l'essai
Essais de traction uniaxée suivant l'axe du tube à vitesse de déformation axiale $dE_{zz}/dt$ imposée.	4 essais $dE_{zz}/dt = 2.10^{-6}, 2.10^{-5}, 2.10^{-4}, 2.10^{-3} s^{-1}$	EDF
Essais de fluage axial à force constante imposée. (En petites perturbations, la contrainte axiale est alors constante.)	7 essais doublés $\Sigma_{zz} = 140, 175, 200, 275, 350, 380, 400$ MPa	EDF
Essais d'éclatement en pressurisation interne à vitesse de déformation circonférentielle $dE_{\theta\theta}/dt$ constante ( $2.10^{-4} s^{-1}$ ) pour différents rapports de biaxialité $\alpha = \Sigma_{zz}/\Sigma_{\theta\theta}$ .	6 essais $\alpha = -0,471, -0,243, 0, 0,233, 0, 448, 0,710$	EDF
Essais de fluage en pressurisation interne (pression p imposée) avec effet de fond. La durée de mise en charge est de 15 s.	5 essais $\Sigma_{\theta\theta} = 300, 314, 339, 366$ et 417 MPa	CEA
Essai de relaxation en pressurisation interne avec effet de fond. Déformation circonférentielle $E_{\theta\theta}$ imposée. Mise en charge de 15 s.	1 essai $E_{\theta\theta} = 0,0064$	CEA

TABLEAU V-8. Essais de caractérisation pour la température de 350 °C du comportement du Zircaloy-4 à l'état détendu irradié durant deux cycles de fonctionnement en REP.

Description de l'essai	Nombre d'essais (sollicitations imposées)	Origine de l'essai
Essais de traction uniaxée suivant l'axe du tube à vitesse de traverse imposée ( $dE_{zz}/dt$ variable au cours de l'essai).	2 essais doublés	CEA
Essais d'éclatement en pressurisation interne avec effet de fond à différentes vitesses de déformation circonférentielle $dE_{\theta\theta}/dt$ .	3 essais doublés $dE_{\theta\theta}/dt = 5.10^{-6}, 2.10^{-5}$ et $2.10^{-4} s^{-1}$	CEA
Essais de fluage en pressurisation interne (pression p imposée) avec effet de fond. La durée de mise en charge est de 15 s.	5 essais $\Sigma_{\theta\theta} = 310, 361, 413, 462$ et 508 MPa	CEA

Malgré un nombre d'études expérimentales en augmentation, la base de données disponibles sur matériau irradié est beaucoup moins étoffée que sur matériau non irradié. Contrairement à Schäffler [1997], nous avons intégré, dans la base expérimentale sur Zircaloy-4 irradié, les essais de traction axiale réalisés sur éprouvettes bilanguettes afin de disposer d'une base conséquente. Le dépouillement de ces essais est effectué suivant la procédure utilisée au CEA.

Il est possible de déterminer la surface de charge initiale du Zircaloy-4 détendu non irradié à l'aide de la base expérimentale disponible, notamment les essais d'éclatement réalisés pour différents rapports de biaxialité  $\alpha = \Sigma_{zz}/\Sigma_{\theta\theta}$ . Par contre, ceci n'est pas possible pour le matériau irradié deux cycles : seules deux directions dans le plan  $(\Sigma_{zz}, \Sigma_{\theta\theta})$  sont sollicitées. La connaissance de cette surface de charge permet alors de caractériser l'anisotropie initiale du matériau. Nous avons utilisé un critère de Hill pour représenter cette surface dont l'expression est la suivante :

$$\Sigma_{eq}^{Hill}(E_{eq}^{vp}) = \sqrt{F(\Sigma_{zz} - \Sigma_{\theta\theta})^2 + G(\Sigma_{\theta\theta} - \Sigma_{rr})^2 + H(\Sigma_{zz} - \Sigma_{rr})^2},$$

avec  $F+H=1$  (équivalence avec la traction axiale).

Le tableau V-9 reporte les valeurs identifiées pour une déformation plastique équivalente  $E_{eq}^{vp}$  au sens de von Mises de  $2.10^{-4}$  et  $10^{-3}$ . Par manque d'informations, nous avons décrit la surface de charge du Zircaloy-4 détendu irradié deux cycles par un critère isotrope de von Mises ; nous verrons par la suite que ce choix n'est pas erroné.

TABLEAU V-9. Détermination de la surface de charge et de l'anisotropie initiales du Zircaloy-4 détendu à 350 °C. Identification du critère de Hill à partir des données expérimentales.

<i>Zircaloy-4 détendu</i>	<i>Déformation plastique équivalente <math>E_{eq}^{vp}</math></i>	<i>F</i>	<i>G</i>	<i>H = 1-F</i>
Non irradié	$2.10^{-4}$	0,28	0,27	0,72
	$10^{-3}$	0,39	0,31	0,61
Irradié deux cycles REP	Non identifié	0,5	0,5	0,5

Nous n'avons pas accès expérimentalement aux termes décrivant l'anisotropie de cisaillement du matériau. Il est important de noter que la détermination des paramètres F, G et H est entachée de nombreuses imprécisions. L'identification de ce critère n'a été effectuée que pour prendre en compte l'anisotropie du comportement viscoplastique du matériau lors de l'évaluation expérimentale du volume d'activation apparent.

L'annexe V-A présente le principe de détermination du volume d'activation ainsi que les résultats obtenus pour l'ensemble de la base expérimentale décrite aux tableaux V-7 et V-8. Nous avons reporté dans le tableau V-10 les valeurs estimées du volume d'activation apparent  $V_{app}$  (valeurs stabilisées) pour les différents types d'essai réalisés. Notons que la détermination expérimentale de  $V_{app}$  reste un exercice difficile du fait de nombreuses imprécisions, notamment sur l'évaluation des vitesses de déformation ; Geyer [1999] estime qu'une incertitude de 10 MPa peut introduire un facteur 2 sur la valeur du volume d'activation. De plus, l'activation de multiples systèmes de glissement, dépendant des directions de sollicitation, rend difficile le passage du volume d'activation apparent au volume d'activation d'un système de glissement : quelle valeur doit être retenue pour effectuer ce changement d'échelle ? Geyer [1999] et Renouard [1999] montrent qu'un facteur de changement d'échelle de 2,5 semble une valeur raisonnable pour obtenir une estimation du volume d'activation du système de glissement le plus actif (pour le chargement considéré).

Il est surtout important de retenir l'ordre de grandeur du volume d'activation apparent que nous avons obtenu, plutôt que les différentes valeurs estimées et de tenter d'expliquer leurs écarts.

TABLEAU V-10. Estimation (expérimentale) du volume d'activation apparent  $V_{app}$ . Zircaloy-4 à l'état détendu non irradié et irradié deux cycles REP à la température de 350 °C.

	Description de l'essai	$V_{app}$
Zircaloy-4 détendu non irradié	Essais de traction uniaxée suivant l'axe du tube.	19 a <sup>3</sup>
	Essais de fluage axial.	13 a <sup>3</sup>
	Essais de fluage en pressurisation interne avec effet de fond.	11 a <sup>3</sup>
	Essai de relaxation en pressurisation interne avec effet de fond.	10 a <sup>3</sup>
Zircaloy-4 détendu irradié deux cycles REP	Essais de traction axiale.	16 a <sup>3</sup>
	Essais d'éclatement en pressurisation interne avec effet de fond.	14 a <sup>3</sup>
	Essais de fluage en pressurisation interne avec effet de fond.	7 a <sup>3</sup>
	Essais de fluage en pressurisation interne (T = 380 °C).	6 a <sup>3</sup>

### 5.3 IDENTIFICATION DU COMPORTEMENT EN FONCTION DE L'IRRADIATION

Afin de ne pas alourdir notre exposé, nous nous sommes limités à présenter, dans ce paragraphe, les coefficients des différents modèles obtenus au cours de notre travail d'identification et les difficultés rencontrées. L'adéquation entre les prévisions des différents modèles et les résultats expérimentaux est présentée dans les annexes V-C et V-D au travers de publications réalisées sur ce travail.

#### *Modélisation du comportement polycristallin du Zircaloy-4 détendu à la température de 350 °C pour les états non irradié et irradié deux cycles de fonctionnement en REP*

Pour mener à bien l'identification, tout en limitant le nombre de paramètres du modèle, nous avons été amenés à effectuer quelques hypothèses simplificatrices, qui pourront être levées par l'apport d'observations supplémentaires, notamment sur matériaux irradiés.

- La densité de dislocations initiale est identique pour tous les systèmes de glissement ( $\rho_0$ ).
- Les coefficients ( $\dot{\gamma}_0^{(s)}$ ,  $V_a^{(s)}$ ,  $\tau_0^{(s)}$ ,  $A_0^{(s)}$ ,  $L^{(s)}$ ,  $G_0^{(s)}$ ) décrivant l'écoulement viscoplastique d'un système de glissement sont constants par famille de glissement.
- De plus, nous avons supposé que le libre parcours moyen des dislocation  $L^{(s)}$  est identique pour tous les systèmes de glissement ayant le même vecteur de Burgers ( $\langle a \rangle$  ou  $\langle c+a \rangle$ ).
- Pour le matériau irradié, nous avons introduit également d'autres hypothèses afin de diminuer le nombre de coefficients, du fait d'une base expérimentale moins étoffée.

Malgré ces différentes simplifications, l'identification du comportement reste un problème délicat à traiter. La connaissance des mécanismes de déformation (cf. paragraphe 2.4) aide notre démarche d'identification. Toutefois, des informations supplémentaires issues d'observations microstructurales (activité relative des systèmes de glissement en fonction de la sollicitation mécanique imposée,...) pourraient alors guider l'identification et/ou permettre de choisir parmi les multiples jeux de coefficients obtenus.

Les coefficients obtenus pour les deux niveaux d'irradiation étudiés sont reportés aux tableaux V-11 et V-12. Nous avons également intégré, dans ces tableaux, la cission critique initiale  $\tau_{c\text{ ini}}^{(s)} (= \tau_0^{(s)} + A_0^{(s)} \mu b^{(s)}(24\rho_0)^{1/2})$  et le rayon d'annihilation des dislocations  $y^{(s)} = G_0^{(s)} b^{(s)}/2$ .



TABLEAU V-11. Identification du modèle polycristallin décrivant le comportement viscoplastique du Zircaloy-4 détendu à l'état non irradié pour la température de 350 °C.

Changement d'échelle - étape de concentration loi en $\beta$				
D	1190	$\delta$	0,43	
Écrouissage intragranulaire (variable $\mathbf{X_g}$ )				
$c_{ig}$	0,27	$d_{ig}$	778	
M (en MPa.s <sup>1/m</sup> )	539	m	2,05	
Écoulement viscoplastique intragranulaire par famille de systèmes de glissement				
Coefficient	Pri <a>	$\pi_1$ <a>	Bas <a>	$\pi_1$ <c+a>
$\tau_0^{(s)}$ (en MPa)	30,0	110	100	100
$V_a^{(s)}$ (en b <sup>(s)3</sup> )	54,5	53,3	10,1	6,3
$\dot{\gamma}_0^{(s)}$ (en s <sup>-1</sup> )	4,5.10 <sup>-8</sup>	1,5.10 <sup>-10</sup>	3,1.10 <sup>-7</sup>	4,9.10 <sup>-9</sup>
$A_0^{(s)}$	0,310	4.10 <sup>-4</sup>	2.10 <sup>-4</sup>	0,076
$L^{(s)}$ (en b <sup>(s)</sup> )	61 (0,02 $\mu$ m)			347 (0,21 $\mu$ m)
$G_0^{(s)}$	1	50	2	50
$\rho_0$ (en m <sup>-2</sup> )	4,8.10 <sup>11</sup>			
$\tau_{c\ ini}^{(s)}$ (en MPa)	40,3	110	100	105
$y^{(s)}$ (en nm)	0,2	8	0,3	15

TABLEAU V-12. Coefficients obtenus pour le modèle polycristallin décrivant le comportement viscoplastique, à la température de 350 °C, du Zircaloy-4 détendu irradié durant deux cycles de fonctionnement en REP.

Changement d'échelle - étape de concentration loi en $\beta$				
D	291	$\delta$	0,54	
Écrouissage intragranulaire (variable $\mathbf{X_g}$ )				
$c_{ig}$	0,27	$d_{ig}$	613	
M (en MPa.s <sup>1/m</sup> )	171	m	4,67	
Écoulement viscoplastique intragranulaire par famille de systèmes de glissement				
Coefficient	Pri <a>	$\pi_1$ <a>	Bas <a>	$\pi_1$ <c+a>
$\tau_0^{(s)}$ (en MPa)	153	153	94,0	228
$V_a^{(s)}$ (en b <sup>(s)3</sup> )	47,2	40,0	12,0	8,8
$\dot{\gamma}_0^{(s)}$ (en s <sup>-1</sup> )	2,7.10 <sup>-8</sup>	1,5.10 <sup>-8</sup>	1,4.10 <sup>-7</sup>	1,1.10 <sup>-7</sup>
$A_0^{(s)}$	0,056			0,072
$L^{(s)}$ (en b <sup>(s)</sup> )	1760 (0,57 $\mu$ m)			1040 (0,63 $\mu$ m)
$G_0^{(s)}$	41,9		20,4	29,7
$\rho_0$ (en m <sup>-2</sup> )	3,0.10 <sup>13</sup>			
$\tau_{c\ ini}^{(s)}$ (en MPa)	168	168	109	264
$y^{(s)}$ (en nm)	7		3	9

Nous retrouvons que le mode de glissement prépondérant sur matériau non irradié est le glissement prismatique, alors qu'il s'agit du système basal sur matériau irradié (cf. paragraphe 2.4). Il est important de noter que l'identification n'est pas possible si l'on ne considère qu'une seule famille de systèmes de glissement actifs. Dans le cas du matériau non

irradié, sur la base expérimentale constituée uniquement des essais réalisés suivant l'axe du tube, l'identification obtenue est correcte si le glissement prismatique est le seul mode de déformation actif. Par contre, il est important de tenir compte de l'activation de systèmes secondaires pour obtenir une identification correcte du comportement sur l'ensemble de la base. Sur le matériau irradié, si on suppose que les systèmes actifs sont les mêmes que sur matériau non irradié, il est possible d'obtenir un jeu de coefficients avec un bon accord modèle/expériences, mais les coefficients obtenus ne sont pas physiquement admissibles (la cission critique des systèmes actifs est très faible, par exemple 5 MPa pour les systèmes de glissement prismatiques). Il est donc impératif, pour obtenir une identification correcte, en accord avec les observations, de tenir compte de l'activation des systèmes de glissement dans le plan de base, ainsi que celle de systèmes secondaires.

La cission critique du glissement basal n'évolue pas de manière significative avec l'irradiation, contrairement aux autres systèmes de glissement qui voient leur cission critique fortement augmenter. Ceci traduit bien l'effet observé de durcissement induit par l'irradiation. Cet effet est à corrélérer avec la présence des défauts engendrés par le bombardement neutronique, ces défauts se situant dans les plans prismatiques ou proches de ces plans (cf. § 2.4) entravant ainsi le glissement des dislocations dans les plans cristallographiques autres que le plan de base.

Le volume d'activation des différents systèmes n'évolue pas de manière importante avec l'irradiation. Au vu des nombreuses imprécisions sur la détermination expérimentale du volume d'activation apparent effectuée à l'annexe V-A, nous retiendrons que les valeurs du volume d'activation identifiées sont cohérentes avec les estimations du volume d'activation apparent (tableau V-10), en prenant un facteur de changement d'échelle de 2,5. En toute rigueur, il serait nécessaire de simuler à l'aide du modèle polycristallin les essais de la base expérimentale, puis de les dépouiller de la même manière que celle utilisée pour déterminer expérimentalement le volume d'activation apparent. On peut également noter que le volume d'activation du glissement principal (basal) dans le matériau irradié est plus faible que celui du glissement prismatique, mode de déformation principal des alliages de zirconium non irradiés. Ceci traduit bien l'augmentation, observée expérimentalement, de la sensibilité à la vitesse de déformation avec l'irradiation.

Les densités de dislocations initiales obtenues sont cohérentes avec celles attendues pour un alliage fortement écroui à l'état initial. L'augmentation de cette densité avec l'irradiation correspond à la création et à la présence de nombreux défauts créés par le bombardement neutronique du matériau. Les distances d'annihilation obtenues sont correctes (quelques dizaines de nm), même si certaines valeurs semblent trop faibles pour le matériau non irradié. Du fait de la structure fortement écrouie du matériau, il est normal de trouver un libre parcours moyen inférieur à la plus petite taille d'un grain (2  $\mu\text{m}$ ). Par contre, par manque d'informations, nous ne pouvons pas corrélérer les valeurs obtenues avec les dimensions de structures intragranulaires de dislocations, notamment sur matériau irradié. On peut également noter que la restauration intragranulaire du matériau (liée à la grandeur  $X_g$ ) est faible.

#### *Identification du modèle DRS pour le Zircaloy-4 détendu à la température de 350 °C*

En utilisant la démarche présentée en introduction (fig. V-1), une base d'essais « numériques », décrite au tableau V-13, a pu être constituée afin de pouvoir caractériser complètement l'anisotropie viscoplastique du matériau. Rappelons que ces essais sont difficilement réalisables sur la géométrie particulière des tubes de gainage.

Les tableaux V-14 et V-15 présentent les coefficients identifiés pour le matériau non irradié et ceux obtenus pour le matériau irradié deux cycles. Notons que ces identifications ont été conduites indépendamment l'une de l'autre, contrairement à Schäffler [1997] qui avait supposé

les tenseurs d'anisotropie constants, indépendants de la température et de l'irradiation. De plus, nous avons pu estimer les composantes d'anisotropie liées aux cisaillements dans l'épaisseur du tube, composantes qui restaient indéterminées suite à l'identification du comportement conduite par Schäffler [1997].

Nous pouvons constater une évolution significative de l'anisotropie viscoplastique du matériau avec l'irradiation. Les différents tenseurs  $M$ ,  $N$  et  $R$  tendent chacun vers le tenseur identité  $I$  traduisant un comportement viscoplastique du matériau devenant isotrope lorsque l'irradiation augmente. Ceci est en accord avec les quelques résultats expérimentaux disponibles dans la littérature (par exemple, [Nakatsuka et Nagai 1987, Murty et Mahmood 1991]).

TABLEAU V-13. Description des essais « numériques » simulés à l'aide du modèle polycristallin venant compléter les bases expérimentales existantes à la température de 350 °C sur Zircaloy-4 détendu non irradié et irradié deux cycles en REP.

Description de l'essai « numérique »	Matériau non irradié	Matériau irradié deux cycles
Essai en cisaillement simple comportant un cycle à $\pm 1$ % de déformation à la vitesse de déformation constante de $10^{-4} \text{ s}^{-1}$ , suivi d'une relaxation de 200 s à 1 % de déformation. Un essai pour chacune des directions $E_{r\theta}$ , $E_{rz}$ , $E_{\theta z}$ .	oui	oui
Essai de fluage incrémental en cisaillement, maintien de 7200 s pour chacun des deux niveaux de contrainte $\Sigma_1$ et $\Sigma_2$ imposés. Un essai pour chacune des directions $\Sigma_{r\theta}$ , $\Sigma_{rz}$ , $\Sigma_{\theta z}$ .	oui $\Sigma_1 = 160 \text{ MPa}$ , $\Sigma_2 = 185 \text{ MPa}$	oui $\Sigma_1 = 175 \text{ MPa}$ , $\Sigma_2 = 250 \text{ MPa}$
Essai de fluage incrémental uniaxial, maintien de 7200 s pour chacun des deux niveaux de contrainte $\Sigma_1$ et $\Sigma_2$ imposés. Un essai pour chacune des directions $\Sigma_{rr}$ , $\Sigma_{zz}$ , $\Sigma_{\theta\theta}$ .	non	oui $\Sigma_1 = 300 \text{ MPa}$ , $\Sigma_2 = 450 \text{ MPa}$
Essais de traction uniaxé à vitesse de déformation constante ( $10^{-5} \text{ s}^{-1}$ jusqu'à 1 % de déformation, puis $10^{-3} \text{ s}^{-1}$ jusqu'à 1,4 %), suivi d'une relaxation de 200 s (à 1,4 % de déformation). Un essai suivant chacune des directions $E_{rr}$ , $E_{zz}$ , $E_{\theta\theta}$ .	oui	oui
Les données expérimentales disponibles pour les essais de traction axiale sont complétées par l'ajout d'une des deux déformations transversales (non mesurées lors de l'essai).	non	oui

TABLEAU V-14. Identification du modèle DRS pour le Zircaloy-4 détendu non irradié à la température (d'essai) de 350 °C.

$\dot{\epsilon}_0$ (en $s^{-1}$ )	$7,9.10^{-10}$	$N_0$ (en MPa)	14,9	n (en -)	1,5	
P (en -)	2690	$P_1$ (en -)	310	$Y_0$ (en MPa)	179,4	
$r_{m0}$ (en MPa.s <sup>-1</sup> )	$2,43.10^{-8}$	$\alpha_0$ (en MPa)	35,5	$m_0$ (en -)	1,92	
Tenseur d'anisotropie	Composante du tenseur					
	$rrrr$	$\theta\theta\theta\theta$	$zzzz$	$r\theta r\theta$	$\theta z \theta z$	$r z r z$
M	0,55	-0,12	1,152 *	0,19	0,22	0,20
N	0,41	-0,17	1,433 *	0,24	0,48	0,54
R	0,05	0,24	1 *	0,89	0,02	0,02

Le symbole \* indique une valeur fixée pour faciliter la comparaison avec les travaux de Schäffler [1997].

TABLEAU V-15. Identification du modèle DRS pour le Zircaloy-4 détendu irradié deux cycles en REP à la température d'essai de 350 °C.

$\dot{\epsilon}_0$ (en $s^{-1}$ )	$8,8 \cdot 10^{-12}$	$N_0$ (en MPa)	44,4	n (en -)	1,9
P (en -)	14490	$P_1$ (en -)	700	$Y_0$ (en MPa)	103,0
$r_{m0}$ (en $MPa \cdot s^{-1}$ )	0	$\alpha_0$ (en MPa)	(1)	$m_0$ (en -)	(1)
Tenseur d'anisotropie	Composante du tenseur				
	$rrrr$	$\theta\theta\theta\theta$	$zzzz$	$r\theta r\theta$	$\theta z \theta z$
M	0,75	1,29	1,152 *	0,93	0,88
N	0,96	0,33	1,433 *	0,52	0,08
R	(1)	(1)	1 *	(1)	(1)

Les valeurs entre parenthèses correspondent à des valeurs qu'il n'est pas nécessaire d'identifier.

Le symbole \* indique une valeur fixée pour faciliter la comparaison avec les travaux de Schäffler [1997].

Au travers des valeurs des coefficients ( $\dot{\epsilon}_0$ ,  $N_0$ , n), on retrouve bien que l'irradiation entraîne un durcissement du matériau et une diminution importante des vitesses de fluage.

L'annexe V-D montre qu'il est possible de décrire correctement la base expérimentale disponible sur Zircaloy-4 détendu irradié deux cycles avec un modèle macroscopique isotrope, mais qu'il existe des écarts non négligeables entre les prévisions de ce modèle isotrope et certains essais « numériques » de cisaillement.

De plus, conformément aux résultats obtenus par Schäffler [1997], nous retrouvons que la restauration statique du matériau irradié est très faible ; notre travail d'identification nous a conduit à prendre une valeur nulle pour le coefficient  $r_{m0}$ .

#### 5.4 SYNTHÈSE

Dans paragraphe 5, nous avons appliqué la démarche hiérarchique, présentée en introduction, à la caractérisation du comportement élastoviscoplastique du Zircaloy-4 détendu.

Il a ainsi été possible d'identifier une modélisation polycristalline du comportement de cet alliage de zirconium à l'état non irradié et après irradiation deux cycles REP. De plus, nous avons pu caractériser complètement l'anisotropie du matériau et montrer que cette dernière diminue avec l'irradiation.

Parallèlement à ces travaux d'identification, une démarche d'implémentation de ces deux modèles dans des codes de calcul par éléments finis a été développée.

- Les modèles polycristallin et DRS sont disponibles dans le code de calcul ABAQUS™, via la procédure UMAT. Les calculs éléments finis, que nous présenterons dans la partie C, ont été réalisés uniquement avec le modèle DRS ; ils restent cependant difficiles à conduire (problèmes numériques). C'est pourquoi l'efficacité numérique de notre démarche d'implémentation a été améliorée grâce à une estimation de la matrice tangente associée au schéma explicite d'intégration utilisé [Fandeur et al. 1999].
- Le modèle DRS a également été intégré dans une version de développement de CASTEM 2000, afin de pouvoir simuler, à l'aide du code de calcul TOUTATIS, le phénomène d'interaction pastille-gaine (cf. chapitre I).

## 6 CONCLUSION

Une modélisation plus fine du comportement élastoviscoplastique anisotrope des alliages de zirconium et de son évolution avec l'irradiation s'avère nécessaire afin de pouvoir décrire la complexité des sollicitations thermomécaniques subies par la gaine en réacteur ou lors d'essais de laboratoire spécifiques.

Nous avons ainsi réalisé l'identification d'une modélisation polycristalline du comportement du Zircaloy-4 détendu à la température de 350 °C dans l'état non irradié et après irradiation deux cycles REP. Nous avons vu qu'il était impératif de tenir compte de l'activation du glissement basal pour une description correcte du comportement des alliages de zirconium irradiés. De plus, la prise en compte de l'activation de systèmes secondaires quel que soit le niveau d'irradiation est nécessaire. Les résultats obtenus sont cohérents avec les observations microstructurales de la littérature ; l'introduction de nouvelles observations, notamment sur alliages irradiés, permettra de compléter ces travaux. Ce modèle de viscoplasticité cristalline est également disponible pour réaliser des simulations numériques par éléments finis à l'échelle des grains.

Grâce à la démarche hiérarchique, présentée en introduction, la caractérisation complète de l'anisotropie viscoplastique du Zircaloy-4 détendu a été obtenue. Le principal résultat est la diminution de cette anisotropie avec l'irradiation. Rappelons que les sollicitations mécaniques engendrées par l'IPG et en pointe d'une fissure de CSC nécessitent la détermination de toutes les composantes anisotropes associées aux termes de cisaillement, composantes inaccessibles par des essais mécaniques.

À l'issue de ce chapitre, nous disposons d'un outil numérique fiable nous permettant de décrire les champs mécaniques locaux au voisinage d'une fissure créée par CSC.

## ***ANNEXES DU CHAPITRE V***



## CHAPITRE V - ANNEXE A.

**RAPPELS SUR LA THÉORIE DES PROCESSUS THERMIQUEMENT ACTIVÉS.  
DÉTERMINATION EXPÉRIMENTALE DU VOLUME D'ACTIVATION**

L'objet de cette annexe est de montrer comment tenir compte de l'anisotropie du matériau dans l'évaluation expérimentale du volume d'activation. Auparavant, nous ferons quelques brefs rappels sur la théorie des processus thermiquement, théorie utilisée pour décrire la loi d'écoulement viscoplastique dans notre modélisation du comportement du Zircaloy-4 détendu.

## 1 THÉORIE DE L'ACTIVATION THERMIQUE [CAGNON 1979]

### 1.1 MÉCANISMES MICROSCOPIQUES DE LA PLASTICITÉ

L'origine de la déformation plastique d'un matériau est, d'un point de vue microscopique, liée au déplacement des dislocations, mouvement pouvant être thermiquement activé. Les obstacles présents dans le matériau sous différentes formes contrôlent leur mouvement. Les forces s'exerçant sur une dislocation ont deux origines :

- Les forces à courte distance liées à l'obstacle que la dislocation doit franchir (friction de réseau, interaction avec des dislocations traversant le plan de glissement, précipités...). L'agitation thermique peut fournir une partie de l'énergie nécessaire au franchissement de ces obstacles et au mouvement des dislocations.
- Les forces à longue distance associées à l'hétérogénéité de déformation plastique (telle que les empilements, les murs de dislocations, les cellules, les joints de grain...). Ces forces sont dites polarisées, car elles freinent les dislocations s'approchant de l'obstacle qui leur est associé et *a contrario* accélèrent leur mouvement lorsqu'elles s'en éloignent.
- Toutefois, certaines interactions ne peuvent être classées dans l'une ou l'autre de ces catégories. C'est notamment le cas du vieillissement dynamique qui traduit une interaction entre éléments interstitiels mobiles et dislocations (atomes d'oxygène dans les alliages de zirconium).

À chacune de ces forces, il est possible d'associer une contrainte microscopique :

- La contrainte effective  $\tau_{\text{eff}}$ , sensible aux variations de la température  $T$  et de la vitesse de déformation, rend compte des interactions locales. Cette contrainte est, en général, décomposée en deux termes :  $\tau_{\text{eff}} = \tau_{\mu} + \tau_v(T)$ ,  $\tau_{\mu}$  partie athermique et  $\tau_v(T)$  contrainte visqueuse correspondant à la partie thermiquement activée, sensible à la température de sollicitation.
- La contrainte interne  $x_i$ , athermique, est liée aux interactions à longue distance entre dislocations et son évolution traduit des changements dans la microstructure du matériau.

La partie athermique ( $\tau_{\mu} + x_i$ ) traduit la présence d'obstacles existants quelle que soit la température de sollicitation.

La contrainte microscopique appliquée  $\tau$  doit être supérieure ou égale à la somme de ces différentes contributions pour permettre le mouvement d'une dislocation :  $\tau = \tau_{\text{eff}} + x_i = \tau_v(T) + (\tau_{\mu} + x_i)$ . L'agitation thermique augmentant avec la température, elle peut alors fournir partiellement ou entièrement l'énergie nécessaire pour franchir les obstacles, à condition toutefois que la contrainte appliquée soit supérieure à la contrainte athermique



$(\tau_\mu + x_i)$ . La contrainte visqueuse  $\tau_v(T)$  est alors décroissante avec la température, ce qui se traduit par l'existence d'une température seuil ( $T_c$ ) au-dessus de laquelle  $\tau_v(T)$  devient négligeable (fig. V-A1).

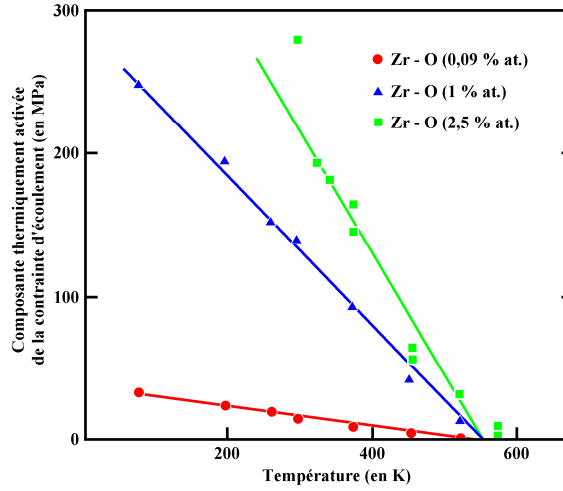


FIG. V-A1. Évolution de la composante visqueuse  $\tau_v$  de la contrainte d'écoulement avec la température [Das Gupta et al. 1968].

## 1.2 DÉFINITION DES GRANDEURS D'ACTIVATION THERMIQUE

La théorie de la dynamique des dislocations se place dans le cadre de la thermodynamique classique (thermochimie) et de la cinétique chimique. Les dislocations sont considérées comme étant en équilibre avec le milieu ambiant (équilibre stable avant et après le franchissement et instable lors du franchissement) ; le franchissement de l'obstacle est traité comme une réaction chimique. Il est alors possible de définir différentes grandeurs d'activation thermique.

Dans ce cadre, au franchissement activé des obstacles correspond une vitesse moyenne de déplacement des dislocations  $v_{\text{moy}}$  égale à  $v_0(T) \exp\left(-\frac{\Delta G(\tau_{\text{eff}})}{k_B T}\right)$ , où  $\Delta G(\tau_{\text{eff}})$  est l'énergie libre nécessaire au franchissement de l'obstacle (formes différentes suivant l'obstacle) et  $\tau_{\text{eff}}$  est la contrainte effective microscopique s'exerçant sur la dislocation.

À l'aide de la formule d'Orowan, nous pouvons relier la vitesse de glissement des dislocations  $\dot{\gamma}^p$  à la vitesse moyenne  $v_{\text{moy}}$  :

$$\dot{\gamma}^p = \rho_m b v_{\text{moy}} = (\rho_m b v_0(T)) \exp\left(-\frac{\Delta G(\tau_{\text{eff}})}{k_B T}\right),$$

avec  $\rho_m$  densité de dislocations mobiles et  $b$  norme du vecteur de Burgers du système de glissement considéré.

Il est courant de choisir la forme suivante :  $\Delta G(\tau_{\text{eff}}) = \Delta G_0 - \tau_{\text{eff}} V_{\text{act}}$ ,  $V_{\text{act}}$  est le volume d'activation.

$V_{\text{act}}$  correspond au volume élémentaire dans lequel s'effectue le franchissement activé de l'obstacle. En fait,  $V_{\text{act}} = b S_{\text{act}}$ , où  $S_{\text{act}}$  est l'aire d'activation, soit la surface balayée par la dislocation dans son plan de glissement lors du franchissement de l'obstacle.

Et

$$\dot{\gamma}^p = (\rho_m b v_0(T)) \exp\left(-\frac{\Delta G_0 - \tau_{\text{eff}} V_{\text{act}}}{k_B T}\right) = \dot{\gamma}_0(T, \rho_m) \exp\left(\frac{\tau_{\text{eff}} V_{\text{act}}}{k_B T}\right).$$

Lorsque l'agitation thermique n'est pas négligeable, il est envisageable que, pour de faibles cisssions effectives, certaines dislocations franchissent en sens inverse l'obstacle qu'elles venaient de surmonter (« sauts en retour »), aidées en cela par la température. Dans ce cas, la vitesse de glissement peut s'écrire :

$$\dot{\gamma}^p = 2\dot{\gamma}_0(T, \rho_m) \sinh\left(\frac{\tau_{\text{eff}} V_{\text{act}}}{k_B T}\right).$$

### 1.3 CHANGEMENT D'ÉCHELLE

Les contraintes microscopiques, définies précédemment, peuvent être reliées à la contrainte macroscopique à l'aide d'un facteur de changement d'échelle  $M$ , à l'image du facteur de Taylor<sup>1</sup>, à savoir  $\Sigma_{\text{eff}} = M \tau_{\text{eff}}$  et  $\Sigma = M \tau$ . De même, la vitesse de déformation plastique macroscopique  $\dot{E}^p$  est reliée à la vitesse de glissement  $\dot{\gamma}^p$  selon la relation  $\dot{\gamma}^p = \dot{E}^p / M$ .

Il est alors possible de définir un volume d'activation apparent  $V_{\text{app}}$  par  $V_{\text{app}} = V_{\text{act}} / M$ .

D'où 
$$\dot{E}^p = \dot{E}_0(T, \rho_m) \exp\left(\frac{\tau_{\text{eff}} V_{\text{act}}}{k_B T}\right) = \dot{E}_0(T, \rho_m) \exp\left(\frac{(\Sigma - X_i) V_{\text{app}}}{k_B T}\right) \text{ (si } \Sigma \geq X_i \text{)}.$$

Ce volume d'activation apparent  $V_{\text{app}}$  est la grandeur que nous pouvons déterminer expérimentalement lors d'essais de relaxation, de fluage ou d'essais de traction avec sauts de vitesse.

Nous avons la relation importante :

$$V_{\text{app}} = k_B T \left[ \frac{\partial \ln(\dot{E}^p / \dot{E}_0)}{\partial \Sigma} \right]_{\substack{T \text{ et microstructure} \\ \text{constantes}}}.$$

La condition « microstructure constante » sous-entend que la déformation plastique  $E^p$  et la contrainte interne  $X_i$  évoluent peu. Cela suppose également que les variations de la densité de dislocations mobiles sont faibles au cours de la sollicitation.

Soit, à température et microstructure constantes,

$$\ln(\dot{E}^p) = \ln(\dot{E}_0) + \frac{(\Sigma - X_i) V_{\text{app}}}{k_B T} = \frac{V_{\text{app}}}{k_B T} \Sigma + \text{constante}$$

## 2 ÉVALUATION EXPÉRIMENTALE DE $V_{\text{APP}}$

Nous allons voir maintenant comment évaluer le volume d'activation lorsque le matériau étudié est anisotrope.

### 2.1 ÉTUDE THÉORIQUE PRÉLIMINAIRE

Supposons que l'on puisse décrire le comportement du matériau en petites déformations à l'aide d'un modèle viscoplastique, où la loi d'écoulement est décrite à l'aide d'une fonction de charge  $F$  avec ou sans seuil  $R_y$ , supposé constant. La vitesse de déformation viscoplastique suit la loi de normalité.

$$F(\Sigma) = J_2^H(\Sigma) - R_y = \sqrt{\frac{3}{2} \Sigma^d : H \Sigma^d} - R_y$$

$$\dot{E}^p = \phi(J_2^H(\Sigma)) \frac{\partial F(\Sigma)}{\partial \Sigma} = \frac{3}{2} \phi(J_2^H(\Sigma)) \frac{[H \Sigma^d]^d}{J_2^H(\Sigma)}$$

<sup>1</sup> Le facteur de Taylor  $M_T$  découle de l'approche polycristalline de Taylor [1938] et relie la déformation plastique macroscopique aux vitesses de glissements des systèmes actifs.

L'anisotropie est prise en compte dans la loi d'écoulement par le critère de Hill qui introduit le tenseur d'ordre quatre  $H$ , diagonal dans le repère d'orthotropie du matériau.

Faisons l'hypothèse d'un chargement radial.

À tout instant  $t$ , le tenseur des contraintes  $\Sigma$  est proportionnel à un tenseur constant  $\Sigma_0$  :  $\Sigma(t) = \lambda(t) \Sigma_0$ ,  $\lambda(t)$  fonction scalaire. Dans ce cas, le tenseur  $\dot{E}^p$  est également proportionnel à  $V_0$ .

$$J_2^H(\Sigma) = |\lambda(t)| J_2^H(\Sigma_0) \quad \text{et} \quad \dot{E}^p = \frac{3}{2} \phi(J_2^H(\Sigma)) \frac{\lambda(t)}{|\lambda(t)|} \frac{[H \Sigma_0^d]^d}{J_2^H(\Sigma_0)} = \phi(\lambda(t) J_2^H(\Sigma_0)) V_0 ,$$

$V_0$  est un tenseur constant déviatorique.

Prenons la loi d'écoulement thermiquement activée pour le multiplicateur viscoplastique :

$$\phi(J_2^H(\Sigma)) = \dot{E}_0(T) \exp\left(\frac{J_2^H(\Sigma) V_{app}}{k_B T}\right).$$

Pour chaque composante,

$$\ln(\dot{E}_{ij}^p) = \ln(\phi(J_2^H(\Sigma))) + \ln(V_{0ij}) = \ln(\dot{E}_0(T)) + \lambda(t) \frac{J_2^H(\Sigma_0)}{k_B T} V_{app} + \ln(V_{0ij}).$$

Or  $\lambda(t) = \frac{\Sigma_{ij}}{\Sigma_{0ij}}$ , d'où

$\ln(\dot{E}_{ij}^p) = \frac{V_{app}}{k_B T} \underbrace{\frac{J_2^H(\Sigma_0)}{\Sigma_{0ij}}}_{\text{terme prenant en compte l'anisotropie du matériau}} \Sigma_{ij} + \underbrace{\ln(\dot{E}_0(T) V_{0ij})}_{\text{terme constant (lorsque T est fixée)}}.$
--

Cette dernière relation nous permet alors d'évaluer le volume d'activation apparent  $V_{app}$  si les coefficients d'anisotropie plastique du matériau (tenseur  $H$ ) sont connus.

## 2.2 APPLICATION AUX ALLIAGES DE ZIRCONIUM

Traisons maintenant quelques exemples correspondant à des essais réalisés sur tubes. L'élasticité est isotrope,  $E$  désignant le module d'Young du matériau et  $\nu$  son coefficient de Poisson.

Lors des essais de traction et en pressurisation interne réalisés sur tubes, seules les directions radiale, circonférentielle et axiale sont sollicitées ; les contraintes de cisaillement et les déformations associées sont nulles.

Les différents tenseurs se réduisent à :

$$\mathbf{E} = \text{diag}(E_{rr}, E_{\theta\theta}, E_{zz}), \quad \mathbf{E}^{vp} = \text{diag}(E_{rr}^{vp}, E_{\theta\theta}^{vp}, E_{zz}^{vp}), \quad \Sigma = \text{diag}(\Sigma_{rr}, \Sigma_{\theta\theta}, \Sigma_{zz}),$$

avec  $\mathbf{E}^{vp} = \mathbf{E} - \left(\frac{1+\nu}{E} \Sigma - \frac{\nu}{E} \text{trace}(\Sigma) \mathbf{I}\right)$ .

La notation suivante sera utilisée :  $T_\Sigma = \text{trace}(\Sigma) = \Sigma_{rr} + \Sigma_{\theta\theta} + \Sigma_{zz}$ .

Seuls les coefficients  $H_r$ ,  $H_\theta$  et  $H_z$  du tenseur  $H$  interviennent :

$$J_2^H(\Sigma) = \sqrt{\frac{3}{2} (H_r (\Sigma_{rr} - T_\Sigma)^2 + H_\theta (\Sigma_{\theta\theta} - T_\Sigma)^2 + H_z (\Sigma_{zz} - T_\Sigma)^2)}.$$

Les coefficients du critère de Hill sont rassemblés au tableau V-9 (chap. V).

Le volume d'activation apparent  $V_{app}$  est relié à la pente  $P_{app}$  de la droite donnant  $\ln(\dot{E}^{vp})$  en fonction de la contrainte associée  $\Sigma$ , la déformation viscoplastique  $E^{vp}$  étant fixée. Il est alors possible d'étudier l'évolution de ce volume d'activation avec la déformation viscoplastique.

Ce volume d'activation apparent est évalué à partir des données expérimentales. Mais nous avons également lissé ces résultats, afin d'améliorer cette évaluation. Sur les exemples présentés ci-dessous (fig. V-A2 à V-A4), nous avons montré les écarts obtenus sur l'évaluation de  $V_{app}$ . Cependant, la détermination de ce volume d'activation apparent reste un exercice difficile. Il est important de retenir l'ordre de grandeur obtenu pour ce volume apparent. Une évaluation plus fine nécessite de mettre en place des essais spécifiques (voir par exemple [Geyer 1999]).

### Essais de traction et d'érouissage

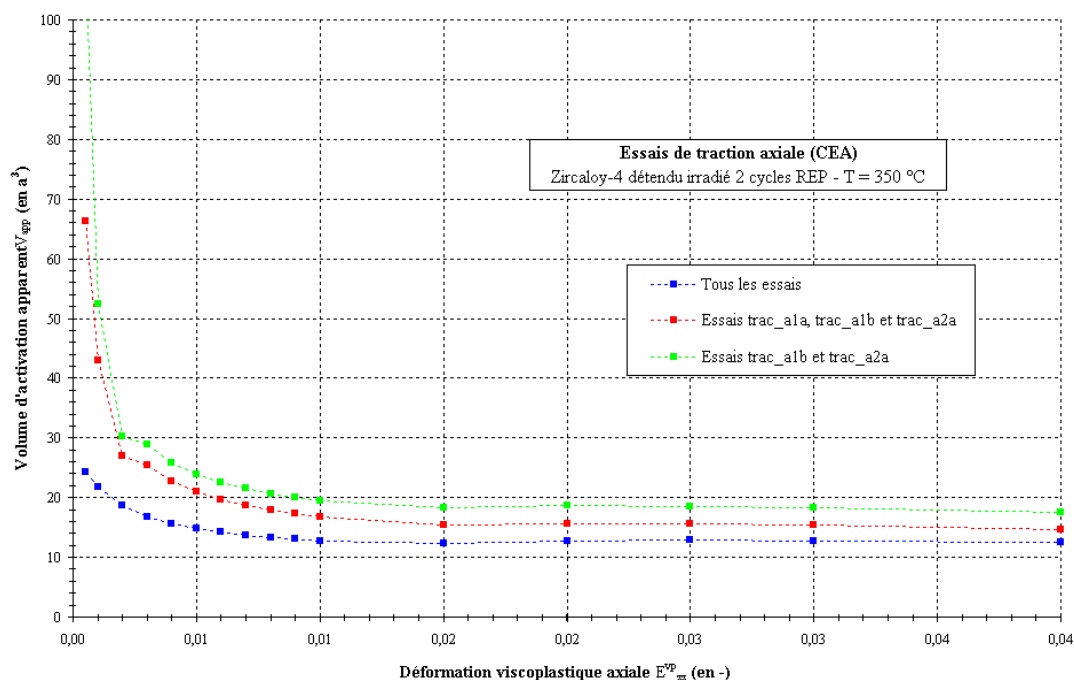


FIG. V-A2. Détermination du volume d'activation apparent à partir des essais de traction axiale réalisés à la température de 350 °C sur du Zircaloy-4 détendu irradié deux cycles REP.

### Essais de fluage

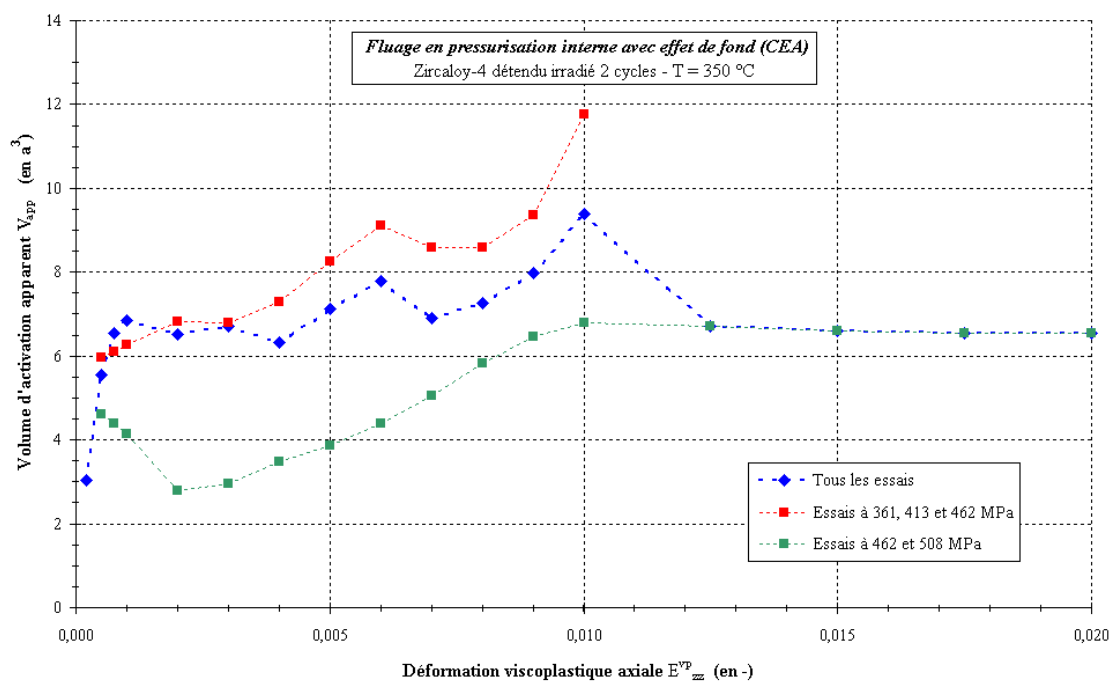


FIG. V-A3. Détermination du volume d'activation apparent à partir des essais de fluage en pressurisation interne réalisés à la température de 350 °C sur du Zircaloy-4 détendu irradié deux cycles.

## Essai de relaxation

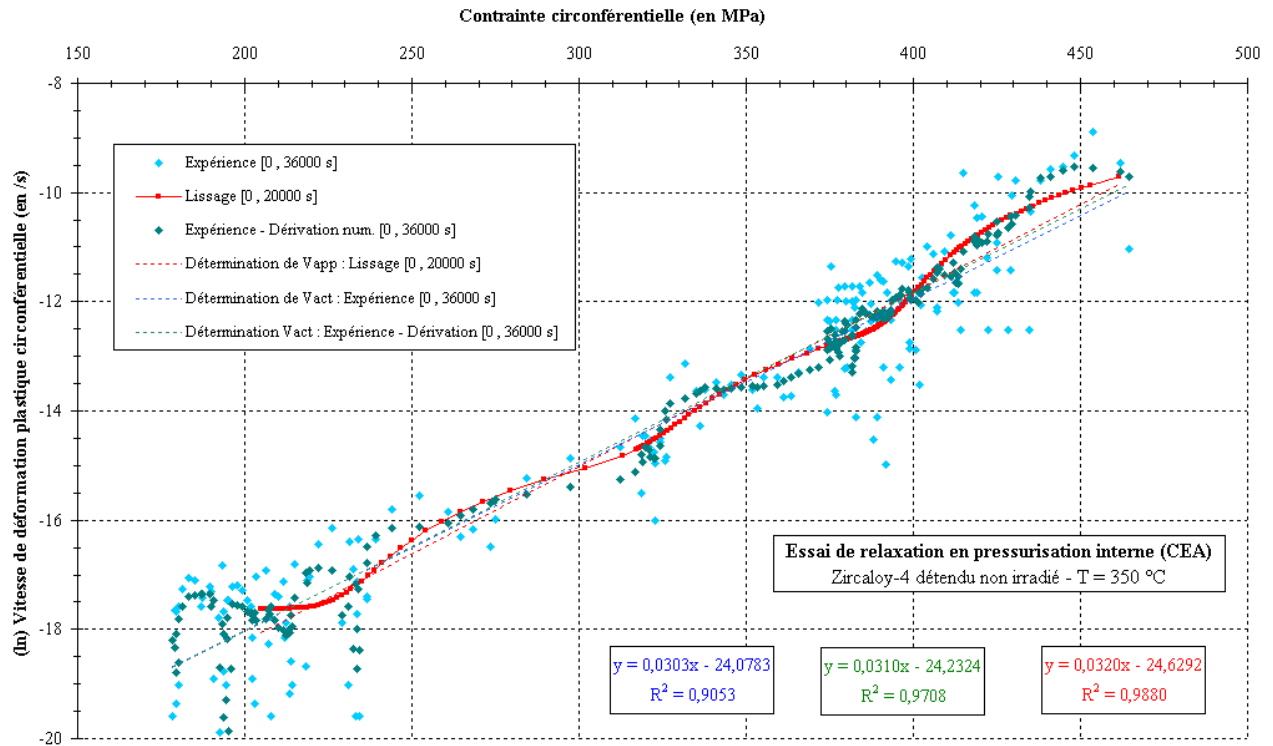


FIG. V-A4. Détermination du volume d'activation apparent à partir de l'essai de relaxation en pressurisation interne réalisés à la température de 350 °C sur du Zircaloy-4 détendu non irradié.

## CHAPITRE V - ANNEXE B.

## EXPRESSIONS DES TENSEURS D'ANISOTROPIE DU MODÈLE DRS

L'objectif de cette annexe est de montrer qu'il est possible d'écrire les matrices d'anisotropie décrites par Delobelle [1993], Robinet [1995] et Schäffler [1997] sous forme de matrices diagonales dans le repère d'orthotropie lié aux directions radiale, circonférentielle et axiale des tubes de gainage en alliages de zirconium.

Considérons un tenseur  $\mathbf{T}$  d'ordre 2, symétrique.  $\mathbf{T}^d$  désigne son déviateur :  $\mathbf{T}^d = \mathbf{T} - \frac{1}{3} \text{trace}(\mathbf{T}) \mathbf{I}$ , où  $\mathbf{I}$  est le tenseur identité.

L'opérateur déviateur sera noté  $\mathcal{D}$ , opérateur isotrope et symétrique ( $\mathcal{D} = \mathcal{D}^t$ ), et  $\mathbf{T}^d = \mathcal{D}\mathbf{T}$ .

Écrivons la relation matricielle entre les tenseurs  $\mathbf{T}$  et  $\mathbf{T}^d$ , tenseurs mis sous forme de vecteurs notés respectivement  $\{\mathbf{T}\}$  et  $\{\mathbf{T}^d\}$  :

$$\{\mathbf{T}^d\} = \begin{pmatrix} \mathbf{T}_{11}^d \\ \mathbf{T}_{22}^d \\ \mathbf{T}_{33}^d \\ \mathbf{T}_{12}^d \\ \mathbf{T}_{23}^d \\ \mathbf{T}_{31}^d \end{pmatrix} = \frac{1}{3} \begin{pmatrix} 2 & -1 & -1 & 0 & 0 & 0 \\ -1 & 2 & -1 & 0 & 0 & 0 \\ -1 & -1 & 2 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 3 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 3 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 3 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \mathbf{T}_{11} \\ \mathbf{T}_{22} \\ \mathbf{T}_{33} \\ \mathbf{T}_{12} \\ \mathbf{T}_{23} \\ \mathbf{T}_{31} \end{pmatrix} = [\mathbf{D}]\{\mathbf{T}\},$$

$[\mathbf{D}]$  est la matrice associée à l'opérateur déviateur  $\mathcal{D}$  et symétrique  $[\mathbf{D}] = [\mathbf{D}]^t$ .

Suivant les notations introduites par Delobelle, Robinet et Schäffler, un tenseur d'anisotropie  $\mathcal{M}$  (d'ordre 4) est défini par la matrice  $[\mathbf{M}]$  suivante :

$$[\mathbf{M}] = \begin{pmatrix} \mathbf{M}_{11} & \mathbf{M}_{12} & \mathbf{M}_{13} & 0 & 0 & 0 \\ \mathbf{M}_{21} & \mathbf{M}_{22} & \mathbf{M}_{23} & 0 & 0 & 0 \\ \mathbf{M}_{31} & \mathbf{M}_{32} & \mathbf{M}_{33} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 2\mathbf{M}_{44} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 2\mathbf{M}_{55} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 2\mathbf{M}_{66} \end{pmatrix} \quad \begin{array}{l} \text{avec les relations d'incompressibilité :} \\ \left\{ \begin{array}{l} \mathbf{M}_{11} + \mathbf{M}_{12} + \mathbf{M}_{13} = 0 \\ \mathbf{M}_{21} + \mathbf{M}_{22} + \mathbf{M}_{23} = 0, \\ \mathbf{M}_{31} + \mathbf{M}_{32} + \mathbf{M}_{33} = 0 \end{array} \right. \\ \text{et } [\mathbf{M}] \text{ est symétrique :} \\ \mathbf{M}_{12} = \mathbf{M}_{21}, \mathbf{M}_{13} = \mathbf{M}_{31}, \mathbf{M}_{23} = \mathbf{M}_{32}. \end{array}$$

La grandeur équivalente associée au tenseur d'anisotropie  $\mathcal{M}$  est définie par :

$$J_2^{\mathcal{M}}(\circ) = \sqrt{\frac{3}{2} \circ^d : \mathcal{M} \circ^d}, \text{ pour un tenseur de contraintes.}$$

En tenant compte des relations d'incompressibilité imposées au tenseur  $\mathcal{M}$ , nous avons :

$$\begin{aligned} J_2^{\mathcal{M}}(\mathbf{T}) &= \sqrt{\frac{3}{2} \mathbf{T}^d : \mathcal{M} \mathbf{T}^d} = \sqrt{\frac{3}{2} \mathbf{T} : \mathbf{M} \mathbf{T}} \left( = \sqrt{\frac{3}{2} \{\mathbf{T}^d\}^t [\mathbf{M}] \{\mathbf{T}^d\}} = \sqrt{\frac{3}{2} \{\mathbf{T}\}^t [\mathbf{M}] \{\mathbf{T}\}} \right) \\ &= \sqrt{\frac{3}{2} \left( \mathbf{M}_{11} \mathbf{T}_{11}^2 + \mathbf{M}_{22} \mathbf{T}_{22}^2 + \mathbf{M}_{33} \mathbf{T}_{33}^2 + 2 \left( \mathbf{M}_{44} \mathbf{T}_{12}^2 + \mathbf{M}_{55} \mathbf{T}_{23}^2 + \mathbf{M}_{66} \mathbf{T}_{31}^2 + \mathbf{M}_{12} \mathbf{T}_{11} \mathbf{T}_{22} + \mathbf{M}_{13} \mathbf{T}_{11} \mathbf{T}_{33} + \mathbf{M}_{23} \mathbf{T}_{22} \mathbf{T}_{33} \right) \right)} \end{aligned}$$

Montrons qu'il est équivalent de remplacer le tenseur d'anisotropie  $\mathcal{M}$  par un tenseur  $\mathcal{H}$  dont la matrice  $[\mathbf{H}]$  est diagonale dans le repère d'anisotropie :  $[\mathbf{H}] = \text{diag}(\mathbf{H}_1, \mathbf{H}_2, \mathbf{H}_3, 2\mathbf{H}_4, 2\mathbf{H}_5, 2\mathbf{H}_6)$ .

Nous devons avoir que  $J_2^{\mathcal{M}}(\circ) = J_2^{\mathcal{H}}(\circ)$ , soit

$$(\forall \mathbf{T}) \mathbf{J}_2^M(\mathbf{T}) = \sqrt{\frac{3}{2} \mathbf{T} : \mathbf{M} \mathbf{T}} = \mathbf{J}_2^H(\mathbf{T}) = \sqrt{\frac{3}{2} \mathbf{T}^d : \mathbf{H} \mathbf{T}^d} = \sqrt{\frac{3}{2} (\mathbf{T} \mathbf{D}^t) : \mathbf{H} (\mathbf{D} \mathbf{T})} = \sqrt{\frac{3}{2} \mathbf{T} : (\mathbf{D}^t \mathbf{H} \mathbf{D}) \mathbf{T}}.$$

D'où

$$\boxed{\mathbf{M} = \mathbf{D}^t \mathbf{H} \mathbf{D}}$$

Matriciellement,  $[\mathbf{M}] = [\mathbf{D}]^t [\mathbf{H}] [\mathbf{D}] = [\mathbf{D}] [\mathbf{H}] [\mathbf{D}]$ .

$$\text{Soit } \begin{cases} \mathbf{M}_{11} = \frac{4}{9} \mathbf{H}_1 + \frac{1}{9} \mathbf{H}_2 + \frac{1}{9} \mathbf{H}_3 & \mathbf{M}_{12} = \mathbf{M}_{21} = -\frac{2}{9} \mathbf{H}_1 - \frac{2}{9} \mathbf{H}_2 + \frac{1}{9} \mathbf{H}_3 & \mathbf{M}_{44} = \mathbf{H}_4 \\ \mathbf{M}_{22} = \frac{1}{9} \mathbf{H}_1 + \frac{4}{9} \mathbf{H}_2 + \frac{1}{9} \mathbf{H}_3 & \mathbf{M}_{13} = \mathbf{M}_{31} = -\frac{2}{9} \mathbf{H}_1 + \frac{1}{9} \mathbf{H}_2 - \frac{2}{9} \mathbf{H}_3 & \mathbf{M}_{55} = \mathbf{H}_5 \\ \mathbf{M}_{33} = \frac{1}{9} \mathbf{H}_1 + \frac{1}{9} \mathbf{H}_2 + \frac{4}{9} \mathbf{H}_3 & \mathbf{M}_{23} = \mathbf{M}_{32} = +\frac{1}{9} \mathbf{H}_1 - \frac{2}{9} \mathbf{H}_2 - \frac{2}{9} \mathbf{H}_3 & \mathbf{M}_{66} = \mathbf{H}_6 \end{cases}$$

Les conditions d'incompressibilité sont bien vérifiées.

Les coefficients de la matrice  $[\mathbf{H}]$  s'expriment alors par<sup>1</sup> :

$$\boxed{\begin{array}{ll} \mathbf{H}_1 = 2\mathbf{M}_{11} + \mathbf{M}_{23} & \mathbf{H}_4 = \mathbf{M}_{44} \\ \mathbf{H}_2 = 2\mathbf{M}_{22} + \mathbf{M}_{13} & \text{et } \mathbf{H}_5 = \mathbf{M}_{55} \\ \mathbf{H}_3 = 2\mathbf{M}_{33} + \mathbf{M}_{12} & \mathbf{H}_6 = \mathbf{M}_{66} \end{array}}$$

La grandeur équivalente (associée au tenseur  $\mathcal{H}$ ) est par  $\mathbf{J}_2^H(\mathbf{T}) = \sqrt{\frac{3}{2} \mathbf{T}^d : \mathbf{H} \mathbf{T}^d}$ .

La règle de dérivation est alors la suivante :

$$\boxed{\frac{\partial \mathbf{J}_2^H(\mathbf{T})}{\partial \mathbf{T}} = \frac{3}{2} \frac{[\mathbf{H} \mathbf{T}^d]^d}{\mathbf{J}_2^H(\mathbf{T})} = \frac{3}{2} \frac{\mathbf{D} \mathbf{H} \mathbf{D} \mathbf{T}}{\mathbf{J}_2^H(\mathbf{T})}}$$

(loi de normalité).

<sup>1</sup> Les relations d'incompressibilité ont été utilisées pour simplifier les expressions des coefficients  $\mathbf{H}_1$ ,  $\mathbf{H}_2$  et  $\mathbf{H}_3$ .

## CHAPITRE V - ANNEXE C

*J. Phys. IV France* **11** (2001)  
© EDP Sciences, Les Ulis

Pr1-109

**Modélisation du comportement mécanique du Zircaloy-4**

O. Fandeur, P. Pilvin\* et C. Prioul\*

CEA, Centre de Saclay, DRN/DMT/SEMI/LEMO, 91191 Gif-sur-Yvette Cedex, France  
\* Laboratoire MSS-Mat, UMR 8579 du CNRS, École Centrale de Paris,  
Grande Voie des Vignes, 92295 Châtenay-Malabry Cedex, France

**Résumé :** Les capacités prédictives d'un modèle phénoménologique macroscopique sont limitées par la base expérimentale utilisée pour identifier le modèle. Ainsi, pour améliorer la description du comportement mécanique des tubes de gainage en alliages de zirconium, il est nécessaire d'introduire de nouvelles données pour identifier complètement l'anisotropie de ces matériaux. En effet, certaines sollicitations, importantes en corrosion sous contrainte, ne sont pas accessibles expérimentalement sur cette géométrie spécifique. Avec une bonne connaissance des mécanismes de déformation plastique, le comportement mécanique peut être mieux appréhendé à l'aide d'une approche micromécanique. Les résultats obtenus par le modèle polycristallin sont alors utilisés pour étendre le domaine de validité de modèles macroscopiques en enrichissant la base expérimentale avec des essais numériques complémentaires.

**1 Introduction**

Dans les réacteurs à eau sous pression (REP), les opérations de contrôle de la puissance du réacteur sont effectuées de manière à garantir l'intégrité des gaines des crayons combustibles qui constituent la première barrière contre la dissémination des produits de fission radioactifs. En effet, lors de transitoires de puissance sévères, la fragmentation des pastilles d'oxyde d'uranium et une forte interaction entre les pastilles et la gaine (IPG) peuvent conduire à la rupture de cette dernière par un processus de corrosion sous contrainte (CSC) suite à l'action de produits de fission agressifs (tels que l'iode). Une meilleure compréhension et prévision de l'endommagement de la gaine créé par CSC permettraient alors d'assurer l'intégrité de la gaine lors des sollicitations plus sévères liées aux nouvelles conditions de fonctionnement des REP.

Une connaissance plus fine du comportement mécanique des alliages de zirconium a permis de proposer récemment de nouveaux modèles élastoviscoplastiques de comportement de la gaine des crayons combustibles [1]. En effet, la modélisation par éléments finis (EF) des phénomènes complexes intervenant en réacteur nécessite des modèles tridimensionnels robustes pour couvrir des domaines importants de contrainte et de vitesse de déformation. C'est, en particulier, le cas lors de l'étude de la CSC des gaines, où les champs mécaniques sont complexes en pointe de fissure.

Le caractère prédictif d'un modèle de comportement macroscopique phénoménologique est directement lié à la base expérimentale utilisée pour l'identification de ce modèle. Ainsi, il est nécessaire d'introduire de nombreuses données dans le but de décrire au mieux le comportement mécanique. Cependant, de par la géométrie particulière des tubes de gainage, certains paramètres caractérisant l'anisotropie du matériau ne sont pas accessibles expérimentalement, ces composantes pouvant être sollicitées au voisinage d'une fissure. Néanmoins, connaissant les mécanismes physiques à l'origine de la déformation plastique, une approche



Pr1-110

## JOURNAL DE PHYSIQUE IV

micromécanique, incluant la microstructure et la texture cristallographique du matériau étudié, peut être mise en œuvre afin d'obtenir une description correcte du comportement mécanique; une échelle plus fine supplémentaire est alors introduite par comparaison avec l'approche macroscopique classique. La confiance accordée à ce type de modélisation est fonction des éléments physiques introduits et de leur interprétation expérimentale. Toutefois, le caractère prévisionnel de cette classe de modèles reste supérieur à celui des modèles macroscopiques phénoménologiques.

Le présent travail a pour but de montrer comment il est possible d'utiliser la structure hiérarchique qui existe entre les deux approches décrites ci-dessus pour obtenir une description correcte du comportement mécanique des alliages de zirconium utilisés comme matériau de gainage des crayons combustibles. Notamment, l'utilisation d'un modèle micromécanique permet d'enrichir la base expérimentale avec des essais numériques, difficilement réalisables technologiquement, et la caractérisation complète de l'anisotropie macroscopique du matériau est alors accessible. La figure 1 synthétise la démarche mise en place.

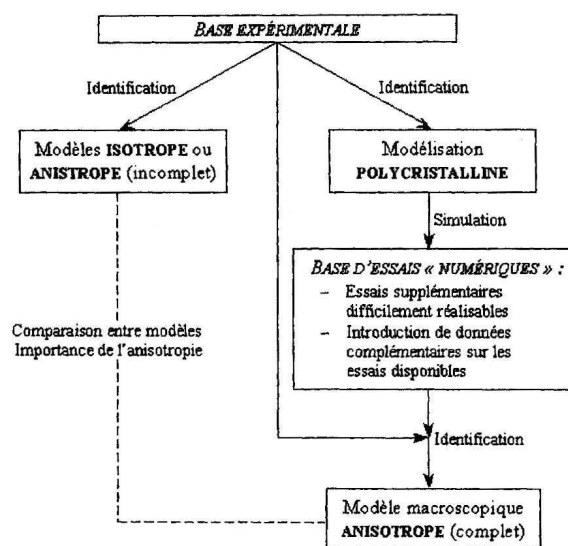


FIG. 1 – Démarche de la caractérisation complète du comportement mécanique.

## 2 Description du matériau étudié

Le matériau étudié est un alliage de zirconium utilisé dans les tubes de gainage des crayons combustibles des réacteurs à eau sous pression. Il s'agit du Zircaloy-4 à basse teneur en étain dont la gamme de fabrication lui confère un état métallurgique détendu. Ses éléments d'alliage, en accord avec la norme ASTM B350.90, ont pour teneur (% massique) : étain 1,32 %, fer 0,21 %, chrome 0,10 %, oxygène 0,12 %.

La géométrie des tubes est définie, pour l'état neuf ou non irradié, qui désignera l'état de référence, par un diamètre extérieur de 9,50 mm et une épaisseur de 0,57 mm. Les éprouvettes en Zircaloy-4 irradié ont été prélevées dans des gaines de crayon combustible qui ont séjourné durant deux cycles de fonctionnement d'un REP français.

Compte tenu de son processus de fabrication, le Zircaloy-4 détendu présente une texture cristallographique très prononcée, comme le montre la figure 2. Cette texture ne semble pas être modifiée de façon significative par l'irradiation [2]. Elle ne sera donc pas à l'origine des modifications du comportement mécanique du matériau avec l'irradiation, puisque les textures pour les deux niveaux d'irradiation étudiés dans le présent travail sont alors considérées comme identiques.

Le traitement de détensionnement, lors de la dernière étape de fabrication, confère également aux tubes une microstructure particulière, fortement écrouie et caractérisée par des grains très allongés dans la direction de laminage (DL), qui correspond à la direction axiale des tubes; aucune zone recristallisée n'a

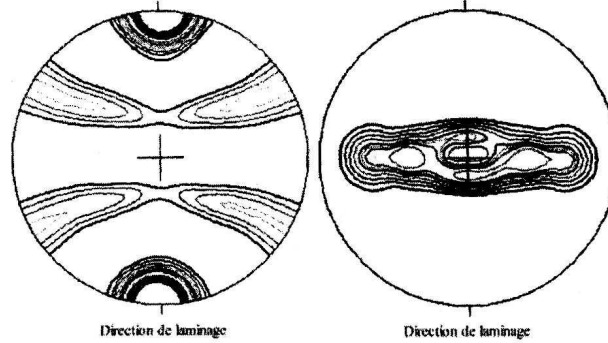


FIG. 2 – Figures de pôles (gauche) plan prismatique ( $10\bar{1}0$ ), (droite) plan de base (0002) [2].

été observée [2]. Les dimensions des grains sont les suivantes :  $20\ \mu\text{m}$  de longueur suivant DL et  $2\ \mu\text{m}$  de largeur dans les autres directions transversales.

La texture fortement prononcée, une microstructure particulière et une maille hexagonale compacte anisotrope conduisent à penser que le matériau présentera une forte anisotropie de comportement mécanique. En supposant que les directions d'anisotropie sont définies par la texture, le Zircaloy-4 détendu aura donc un comportement orthotrope dont les directions sont respectivement les directions radiale, circonférentielle et axiale des tubes. Malgré une anisotropie plastique très marquée, l'élasticité est considérée isotrope (le tenseur de Hooke sera noté  $C^e$ ) et les constantes élastiques (le module d'Young  $E$  et le coefficient de Poisson  $\nu$ ) sont uniquement fonctions de la température et non de l'irradiation qui ne modifie que la plasticité du matériau.

### 3 Modélisation du comportement mécanique des alliages de zirconium

#### 3.1 Comportement macroscopique : une approche phénoménologique

Le cadre de la thermodynamique des processus irréversibles [3] permet de modéliser et de décrire, à l'échelle macroscopique, le comportement non linéaire du matériau. L'effet d'histoire du chargement thermomécanique sur le comportement actuel du matériau est pris en compte par l'introduction de variables internes, via un potentiel de dissipation qui doit intégrer la viscosité du matériau si cette dernière est importante.

Le modèle, décrit par la suite, est une version simplifiée du modèle qui a initialement été développé pour décrire le comportement élastoviscoplastique isotrope de l'acier 316L [4] puis adapté pour l'étude du Zircaloy-4 en incluant l'anisotropie de ce matériau [5]. Cette anisotropie est introduite à l'aide de plusieurs tenseurs d'ordre quatre notés  $\mathcal{M}$ ,  $\mathcal{N}$  et  $\mathcal{R}$ ; ces tenseurs sont supposés constants et diagonaux dans le repère d'anisotropie.

Dans le cadre des petites déformations, la déformation  $E$  est la somme d'une contribution élastique  $E^e$  et d'une seule variable de déformation viscoplastique  $E^{vp}$  (modèle unifié).

$$E = E^e + E^{vp} \text{ avec } \Sigma = C^e E^e \quad (1)$$

La contrainte  $\Sigma$  peut également être décomposée en deux termes : une contrainte interne  $\alpha$  déviatorique et une contrainte d'origine visqueuse  $\Sigma_v$ . Ce modèle ne présente pas de seuil de viscoplasticité.

L'écoulement viscoplastique suit la loi de normalité (2). La fonction  $\sinh$ , servant à décrire l'évolution de la vitesse de déformation viscoplastique en fonction de la contrainte visqueuse, assure que pour les faibles contraintes le comportement du matériau est quasi-élastique, mais traduit une non-linéarité très importante du comportement viscoplastique du matériau dans le domaine des fortes contraintes.

$$\dot{E}^{vp} = \frac{3}{2} \Lambda_0 \frac{[\mathcal{M}(\Sigma^d - \alpha)]^d}{\Sigma_v} \text{ où } \Lambda_0 = \dot{\epsilon}_0 \left[ \sinh \left( \frac{\Sigma_v}{N} \right) \right]^n \text{ et } \Sigma_v = J_2^{\mathcal{M}}(\Sigma - \alpha) \quad (2)$$

Dans la suite du texte, la notation  $J_2^{\mathcal{K}}(Z)$  désigne la grandeur équivalente  $\sqrt{\frac{3}{2} Z^d : \mathcal{K} Z^d}$ , où  $Z^d$  est le déviateur de  $Z$ . L'évolution de l'écrouissage cinématique est décrite à l'aide de deux variables internes

Pr1-112

## JOURNAL DE PHYSIQUE IV

déviatoriques  $\alpha$  et  $\alpha_1$  (4) qui prennent en compte, d'une part, la restauration dynamique et, d'autre part, la restauration d'origine statique du matériau.

$$\dot{\alpha} = \left[ \mathcal{N} \left( \frac{2}{3} P(Y_0 + Y) \dot{E}^{vp} - P \Lambda_0 [\alpha - \alpha_1] - r_{m0} \left[ \sinh \left( \frac{J_2^R(\alpha)}{\alpha_0} \right) \right]^{m_0} \frac{\mathcal{R} \alpha}{J_2^R(\alpha)} \right) \right]^d \quad (3)$$

$$\dot{\alpha}_1 = P_1 \left[ \mathcal{N} \left( \frac{2}{3} (Y_0 + Y) \dot{E}^{vp} - \Lambda_0 \alpha_1 \right) \right]^d \quad (4)$$

L'écroutissage isotrope, qui permet de prendre en compte l'adoucissement du matériau lors d'essais cycliques, est également modélisé à l'aide d'une variable scalaire  $Y$ , dont la valeur asymptotique  $Y_{sat}$  est une constante dans le cas du Zircaloy-4 :

$$\dot{Y} = b(Y_{sat} - Y) \quad (5)$$

La viscoplasticité du matériau est définie à l'aide des quatre variables internes  $E^{vp}$ ,  $\alpha$ ,  $\alpha_1$  et  $Y$ , nulles à l'instant initial, des 11 coefficients  $\dot{\epsilon}_0$ ,  $N$ ,  $n$ ,  $P$ ,  $P_1$ ,  $r_{m0}$ ,  $m_0$ ,  $\alpha_0$ ,  $Y_0$ ,  $b$ ,  $Y_{sat}$  et des trois tenseurs  $\mathcal{M}$ ,  $\mathcal{N}$  et  $\mathcal{R}$  (définis chacun par cinq coefficients). Le cas où  $\mathcal{M} = \mathcal{N} = \mathcal{R} = \mathcal{I}$  (tenseur identité) correspond au modèle isotrope initialement écrit par Delobelle [4].

### 3.2 Une approche micromécanique du comportement

L'objectif d'une modélisation polycristalline est de déterminer le comportement macroscopique du matériau à l'échelle d'un volume élémentaire représentatif (VER) en tenant compte des mécanismes physiques à l'origine de la déformation plastique du matériau et de sa microstructure.

Pour l'étude des agrégats polycristallins métalliques, un niveau d'hétérogénéité supplémentaire est introduit par rapport à l'approche macroscopique décrite au paragraphe précédent : il s'agit du grain. Compte tenu du nombre important de grains inclus dans le VER (plusieurs milliers), il n'est pas possible de prendre en compte le comportement mécanique et la position de chaque grain de l'agrégat. Un certain nombre d'hypothèses simplificatrices sont alors posées ; pour un polycristal, une description incomplète est utilisée. Un « grain » (ou phase) rassemble, en réalité, tous les grains du VER ayant la même orientation cristalline. Dans cette représentation, la définition d'une phase se limite à la donnée de la fonction de distribution des orientations cristallines (FDOC) et quelques éléments sur la morphologie moyenne des grains, puisque la distribution spatiale et le voisinage de chaque grain ne sont pas pris en compte.  $G$  désigne l'ensemble des phases décrites par la FDOC.

Le passage échelle macroscopique-échelle microscopique, qui consiste à relier les variables macroscopiques ( $E$ ,  $E^{vp}$ ,  $\Sigma$ ) et les variables microscopiques définies pour chaque grain ( $\epsilon$ ,  $\epsilon_g^{vp}$ ,  $\sigma_g$ ), s'effectue à l'aide d'une approche autocohérente permettant une bonne description des interactions mécaniques existant entre les phases. Dans le cadre des petites déformations, la déformation macroscopique  $E$  se décompose en déformation élastique  $E^e$ , reliée à la contrainte macroscopique  $\Sigma$  par la loi d'élasticité, et en déformation viscoplastique  $E^{vp}$  - équation 1. En supposant l'élasticité isotrope et homogène dans tout l'agrégat, hypothèse raisonnable dans le cas du Zircaloy-4, la vitesse de déformation viscoplastique macroscopique est la somme des vitesses viscoplastiques de chaque grain pondérées par leur fraction volumique  $f_g$  respective :

$$\dot{E}^{vp} = \sum_{g \in G} f_g \dot{\epsilon}_g^{vp} \quad (6)$$

La règle de changement d'échelle, dite loi en  $\beta$ , reliant la contrainte macroscopique  $\Sigma$  à la contrainte microscopique  $\sigma_g$ , permet de prendre en compte la forme ellipsoïdale des grains par l'introduction du tenseur d'Eshelby  $S$ .

$$\sigma_g = \Sigma + C^e (\mathcal{I} - S)(B - \beta_g), \quad B = \sum_{g \in G} f_g \beta_g \quad \text{et} \quad \Sigma = \sum_{g \in G} f_g \sigma_g \quad (7)$$

La variable  $\beta_g$ , définie pour chaque grain, schématise l'accommodation inélastique des incompatibilités intergranulaires qui apparaît lors de sollicitations cycliques [6]. Sa loi d'évolution, qui dépend de deux paramètres  $D$  et  $\delta$ , est donnée par :

$$\dot{\beta}_g = \dot{\epsilon}_g^{vp} - D \sqrt{\frac{2}{3} \dot{\epsilon}_g^{vp} : \dot{\epsilon}_g^{vp}} (\beta_g - \delta \epsilon_g^{vp}) \quad (8)$$

43<sup>e</sup> COLLOQUE DE MÉTALLURGIE

Pr1-113

Au niveau de chaque grain, seul le glissement cristallographique accommode la déformation plastique. Le mouvement des dislocations s'effectue par glissement dans des plans cristallographiques ( $s$ ) particuliers, définis par leur normale unitaire  $\vec{n}^{(s)}$ , et suivant des directions bien définies par le vecteur unitaire  $\vec{l}^{(s)}$  qui est relié au vecteur de Burgers du système  $\vec{b}^{(s)} = b^{(s)}\vec{l}^{(s)}$ . L'orientation de chaque système de glissement est caractérisée par son tenseur d'orientation  $m^{(s)}$ . La vitesse de déformation plastique  $\dot{\epsilon}_g^{vp}$  est construite à partir de la vitesse de glissement  $\dot{\gamma}^{(s)}$  de chaque système ( $s$ ) ( $S$  désigne l'ensemble des systèmes pouvant être activés) :

$$\dot{\epsilon}_g^{vp} = \sum_{s \in S} \dot{\gamma}^{(s)} m^{(s)} \text{ avec } m^{(s)} = \frac{1}{2}(\vec{n}^{(s)} \otimes \vec{l}^{(s)} + \vec{l}^{(s)} \otimes \vec{n}^{(s)}) \quad (9)$$

Dans le Zircaloy-4, les modes de déformation pouvant être activés sont les systèmes de glissement basaux, prismatiques et pyramidaux de première espèce  $\pi_1$  [7]. Tous ces systèmes ont un vecteur de Burgers parallèle au plan de base de la maille hexagonale compacte, de norme  $b^{(s)}$  identique et égale à  $\langle a \rangle$ . Le glissement pyramidal  $\pi_1$  de vecteur de Burgers  $\langle c+a \rangle$  peut aussi être activé pour accommoder la déformation suivant l'axe  $c$  de la maille cristallographique. Au total, 24 systèmes de glissement regroupés en quatre familles peuvent être activés. Suivant la loi de Schmid et Boas, un système de glissement est actif si sa cisssion effective  $\tau_{eff}^{(s)}$  est supérieure à une cisssion critique  $\tau_c^{(s)}$ . La cisssion effective sur le système de glissement s'exprime par l'intermédiaire du tenseur  $m^{(s)}$  et de la contrainte  $\sigma_g$  :

$$\tau_{eff}^{(s)} = (\sigma_g - X_g) : m^{(s)} \quad (10)$$

Dans la relation (10), la contrainte interne  $X_g$  sert à décrire les hétérogénéités intragranulaires générées au cours de la déformation plastique et correspond aux interactions à longue distance s'opposant au mouvements des dislocations. Son évolution est décrite par une loi classique de type Armstrong-Frederick qui intègre un terme de restauration lié à une modification des structures de dislocations ( $\mu$  est le module de Coulomb du matériau).

$$X_g = 2\mu c_{ig} \alpha_g, \dot{\alpha}_g = \dot{\epsilon}_g^{vp} - d_{ig} \left( \sqrt{\frac{2}{3} \dot{\epsilon}_g^{vp} : \dot{\epsilon}_g^{vp}} \right) \alpha_g - \left( \frac{J_2(X_g)}{M} \right)^m \alpha_g \quad (11)$$

La loi régissant l'écoulement viscoplastique sur un système de glissement particulier ( $s$ ) est la suivante, où  $V_0^{(s)}$  est le volume d'activation du système ( $s$ ) :

$$\dot{\gamma}^{(s)} = 2\dot{\gamma}_0^{(s)} \sinh \left( \frac{[|\tau_{eff}^{(s)}| - \tau_c^{(s)}] V_0^{(s)}}{k_B T} \right) \text{signe}(\tau_{eff}^{(s)}) \text{ si } |\tau_{eff}^{(s)}| > \tau_c^{(s)}, \text{ sinon } \dot{\gamma}^{(s)} = 0 \quad (12)$$

Il est nécessaire de tenir compte, au cours de la déformation, de l'évolution de l'écrouissage du matériau qui est liée à la multiplication des dislocations. L'introduction de variables internes, telle que la densité de dislocations  $\rho^{(s)}$  sur chaque système de glissement, permet de modéliser l'évolution  $\tau_c^{(s)}$  (13) de la cisssion critique.

$$\tau_c^{(s)} = \tau_0^{(s)} + A_0^{(s)} \mu b^{(s)} \sqrt{\sum_{u \in S} \rho^{(u)}} \quad (13)$$

où  $\tau_0^{(s)}$  est la cisssion critique initiale. Les densités de dislocations évoluent au cours de l'écrouissage suivant la loi (14) comprenant deux termes. Le premier terme traduit la production de dislocations suivant la relation d'Orowan et le second décrit l'annihilation des dislocations au cours de leur mouvement.

$$\dot{\rho}^{(s)} = \frac{|\dot{\gamma}^{(s)}|}{b^{(s)}} \left( \frac{1}{L^{(s)}} - G_0^{(s)} b^{(s)} \rho^{(s)} \right) \text{ et } \rho^{(s)}(t=0) = \rho_0^{(s)} \quad (14)$$

Dans (14),  $\rho_0^{(s)}$  désigne la densité initiale de dislocations,  $L^{(s)}$  le libre parcours moyen des dislocations et  $G_0^{(s)} b^{(s)}$  la distance d'annihilation.

Les coefficients du modèle polycristallin sont  $D$ ,  $\delta$ ,  $c_{ig}$ ,  $d_{ig}$ ,  $M$ ,  $m$  et, pour chaque famille de systèmes de glissement,  $\dot{\gamma}_0^{(s)}$ ,  $V_0^{(s)}$ ,  $\tau_0^{(s)}$ ,  $L^{(s)}$ ,  $G_0^{(s)}$ ,  $\rho_0^{(s)}$ . Par la suite, la densité initiale de dislocations  $\rho_0^{(s)}$  est supposée identique quel que soit le système de glissement et, ainsi, sera notée  $\rho_0$ . Au total, 27 coefficients sont à identifier, soit autant que pour le modèle macroscopique anisotrope présenté précédemment. Malgré ses fondements physiques mieux établis, l'identification du modèle polycristallin reste un problème délicat à traiter [7].

Pr1-114

JOURNAL DE PHYSIQUE IV

#### 4 Description de la base expérimentale

Ce paragraphe décrit successivement les essais disponibles pour caractériser le comportement mécanique du Zircaloy-4 détendu à l'état respectivement neuf (tableau 1) et irradié durant deux cycles de fonctionnement en REP (tableau 2). Tous ces essais ont été réalisés sur une même géométrie, à savoir un tronçon de tube de gainage, et à la température de 350 °C, représentative des conditions régnant en réacteur. Lors des essais en pressurisation interne, le rapport  $\alpha$  entre les contraintes axiale et circonférentielle ( $\alpha = \Sigma_{zz}/\Sigma_{\theta\theta}$ ) est égal à 0,5, sauf indication contraire. Seules les données expérimentales pour lesquelles la déformation est inférieure à 0,02 sont prises en compte afin d'être cohérent avec l'hypothèse des petites déformations retenue pour l'écriture des modèles décrits précédemment.

Tableau 1. Base expérimentale disponible sur le Zircaloy-4 détendu à l'état neuf non irradié.

Essais d'éclatement en pressurisation interne à vitesse de déformation circonférentielle constante $dE_{\theta\theta}/dt = 2.10^{-4} \text{ s}^{-1}$ pour différents rapports $\alpha$ variant de -0,47 à 0,71.
Essais de fluage en pressurisation interne ( $\alpha=0,5$ ) à différents niveaux de contrainte circonférentielle : $\Sigma_{\theta\theta}$ varie de 300 à 420 MPa.
Un essai de relaxation en pressurisation interne ( $\alpha=0,5$ ) pour une déformation totale circonférentielle $E_{\theta\theta}$ de 0,0064.
Essais de traction selon l'axe du tube pour différentes vitesses de déformation axiale : $dE_{zz}/dt = 2.10^{-6}, 2.10^{-5}, 2.10^{-4}$ et $2.10^{-3} \text{ s}^{-1}$ .
Essais de fluage selon l'axe du tube à différents niveaux de contrainte axiale : $\Sigma_{zz}$ varie de 140 à 400 MPa.

Malgré un nombre d'études expérimentales en augmentation, la base de données disponibles sur matériau irradié est moins complète (voir tableau 2). Ce fait rend encore plus délicate la phase d'identification des modèles purement phénoménologiques. L'intérêt d'un modèle polycristallin apparaît plus nettement dans cette situation, car certains choix peuvent s'appuyer sur des observations microstructurales pour guider la démarche d'identification. Néanmoins, les premiers résultats obtenus dans ce travail doivent encore être validés par de nouvelles investigations expérimentales.

Tableau 2. Essais réalisés sur le Zircaloy-4 détendu irradié.

Essais d'éclatement en pressurisation interne ( $\alpha=0,5$ ) pour différentes vitesses de déformation circonférentielle : $dE_{\theta\theta}/dt = 5.10^{-6}, 2.10^{-5}$ et $2.10^{-4} \text{ s}^{-1}$ .
Essais de fluage en pressurisation interne ( $\alpha=0,5$ ) à différents niveaux de contrainte circonférentielle : $\Sigma_{\theta\theta}$ varie de 300 à 510 MPa (la durée des essais est limitée à 2 heures).
Essais de traction suivant l'axe du tube : la vitesse de déformation axiale est variable au cours de l'essai.

#### 5 Résultats de l'identification

L'identification du modèle polycristallin a été conduite indépendamment pour les matériaux non irradié et irradié, présentés précédemment, sur toute la base expérimentale associée. Le tableau 3 regroupe, pour chaque dose d'irradiation étudiée, les valeurs obtenues pour certains paramètres gouvernant l'activation et l'écoulement viscoplastique d'un système de glissement, à savoir respectivement la cission critique  $\tau_{c\text{ini}}^{(s)}$  définie par (15) et le volume d'activation  $V_0^{(s)}$ .

$$\tau_{c\text{ini}}^{(s)} = \tau_0^{(s)} + A_0^{(s)} \mu b^{(s)} \sqrt{\sum_{u \in S} \rho_0^{(u)}} \quad \left( = \tau_0^{(s)} + A_0^{(s)} \mu b^{(s)} \sqrt{24\rho_0} \right) \quad (15)$$

Tableau 3. Paramètres du modèle polycristallin pour le Zircaloy-4 détendu non irradié et (irradié).

Famille	basal	prismatique	$\pi_1 <a>$	$\pi_1 <c+a>$
$\tau_{c\text{ini}}^{(s)}$ (en MPa)	100 (109)	40 (168)	110 (168)	105 (264)
$V_0^{(s)}$ (en $b^{(s)3}$ )	10 (12)	55 (47)	53 (40)	6 (9)

43<sup>e</sup> COLLOQUE DE MÉTALLURGIE

Pr1-115

Les résultats obtenus sont en cohérence avec les observations microscopiques effectuées sur des alliages de zirconium non irradiés [7] et irradiés [8,9] et, notamment, la modification par l'irradiation du mode de glissement principal. En effet, le glissement prismatique est le mode de déformation prépondérant dans les alliages de zirconium non irradiés et cela quelle que soit la direction de sollicitation ; le glissement basal n'est pas (ou très rarement) observé [7]. Par contre, le glissement basal devient le mode de déformation principal dans un alliage de zirconium irradié [8,9]. Les défauts créés lors de l'irradiation sont à l'origine de ce changement et du durcissement du matériau (augmentation des cissions critiques). Quel que soit le niveau d'irradiation, le Zircaloy-4 détendu présente, à 350°C, une sensibilité importante à la vitesse de déformation dans le domaine de vitesses de déformations étudié. On note une faible évolution des volumes d'activation qui doit pouvoir être reliée à la distribution spatiale des défauts d'irradiation. Le bombardement neutronique engendre des boucles lacunaires de vecteur de Burgers  $\langle a \rangle$  qui sont majoritairement situées dans les plans prismatiques de la maille hexagonale, entravant ainsi le mouvement des dislocations suivant ces plans. Il est à noter que l'identification conduit à des résultats médiocres si une seule famille de systèmes de glissement est considérée active. Il est alors indispensable de prendre en compte la possibilité d'activer d'autres systèmes de glissement afin d'obtenir une description correcte du comportement pour les différentes directions de sollicitation de la base expérimentale.

En utilisant la démarche exposée dans l'introduction, une base d'essais « numériques » peut être constituée pour identifier certaines composantes liées aux cisaillements dans l'épaisseur du tube ; une détermination expérimentale complète des tenseurs d'anisotropie  $\mathcal{M}$ ,  $\mathcal{N}$  et  $\mathcal{R}$  a été réalisée. Les résultats obtenus pour  $\mathcal{M}$  sont reportés dans le tableau 4 où l'on remarque une évolution significative des valeurs avec l'irradiation. Celle-ci est en relation directe avec le changement de système de glissement principal. On notera que, dans l'identification proposée par [1], les composantes associées aux cisaillements sont indéterminées et que les tenseurs  $\mathcal{M}$ ,  $\mathcal{N}$  et  $\mathcal{R}$  sont supposés indépendants de la dose d'irradiation.

Tableau 4. Tenseur d'anisotropie  $\mathcal{M}$  identifié pour le Zircaloy-4 détendu non irradié et irradié.

	$\mathcal{M}_{rrrr}$	$\mathcal{M}_{\theta\theta\theta\theta}$	$\mathcal{M}_{zzzz}$	$\mathcal{M}_{r\theta r\theta}$	$\mathcal{M}_{\theta z \theta z}$	$\mathcal{M}_{rz rz}$
Neuf	0,55	-0,12	1,15	0,19	0,22	0,20
Irradié 2 cycles	0,75	1,29	1,15	0,93	0,88	0,86

Les figures 3 à 6 illustrent, pour certains essais, les prévisions des modèles retenus dans ce travail en regard des résultats expérimentaux. Un bon accord est constaté sur l'ensemble de la base expérimentale. La spécificité de la démarche hiérarchique est mise en évidence sur les figures 7 et 8, où sont confrontées les prévisions du modèle phénoménologique macroscopique (noté AniEvp sur les figures) avec des essais « numériques » en cisaillement dans l'épaisseur obtenus avec le modèle polycristallin (noté Polycrystal). On rappelle que ce type d'essais n'est pas réalisable pratiquement compte tenu de la géométrie spécifique des tubes de gainage.

## Remerciements

Les auteurs remercient pour leur contribution respective A. Soniak, J.L. Béchade et T. Bredel (CEA Saclay), P. Bouffieux, Ph. Geyer et S. Leclercq (EDF Les Renardières) et V. Rebeyrolle (Framatome Lyon).

## Références

1. I. Schäffler-Le Pichon, Ph. Geyer, P. Bouffieux, P. Delobelle, in *Trans. of the 14<sup>th</sup> SMIRT*, Lyon, 1997.
2. J.L. Béchade, *Communication personnelle*, 1999.
3. J. Lemaitre, J.L. Chaboche, in *Mécanique des matériaux solides* (Dunod, Paris, 1985).
4. P. Delobelle, *Int. J. Plast* 9, p. 87-118 (1983).
5. P. Robinet, *Thèse de l'UFR des Sciences et Techniques de l'Université de Franche-Comté*, 1995.
6. Ph. Pilvin, in *Multiaxial Fatigue and Design, ESIS 21, 1996*, édité par A. Pineau, G. Cailletaud et T.C. Lindley (Editions MEP, London, UK).
7. Ph. Geyer, *Thèse de l'École des Mines de Paris* (1999).
8. C. Regnard, C. Lemaignan, in *Le Zirconium, Journées d'études "Propriétés - microstructures"* édité par G. Cailletaud, P. Lemoine (EDP Sciences, les Ulis, 1996).
9. F. Lefebvre, C. Lemaignan, C. Regnard, L. Rouillon, T. Magnin, M. Frégonèse, in *12<sup>th</sup> International Symposium on Zirconium in the Nuclear Industry*, Toronto, Canada, 1998.



Pr1-116

## JOURNAL DE PHYSIQUE IV

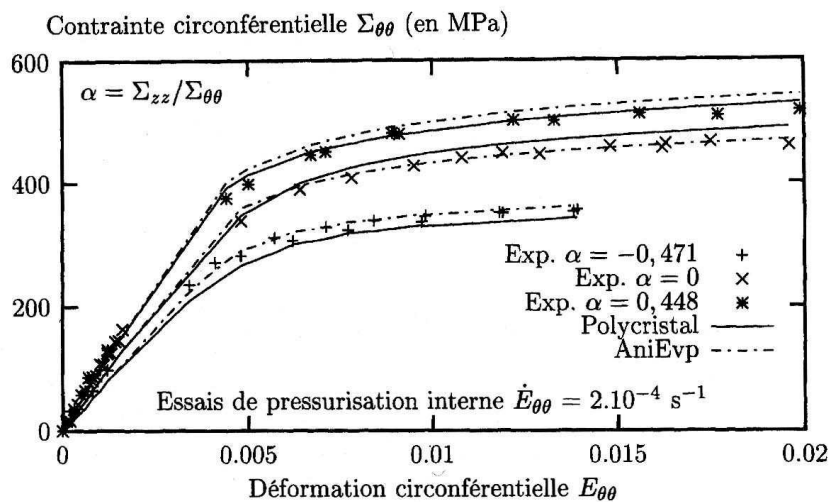


FIG. 3 - Essais d'écroutissage en pressurisation interne - Zircaloy-4 détendu non irradié.

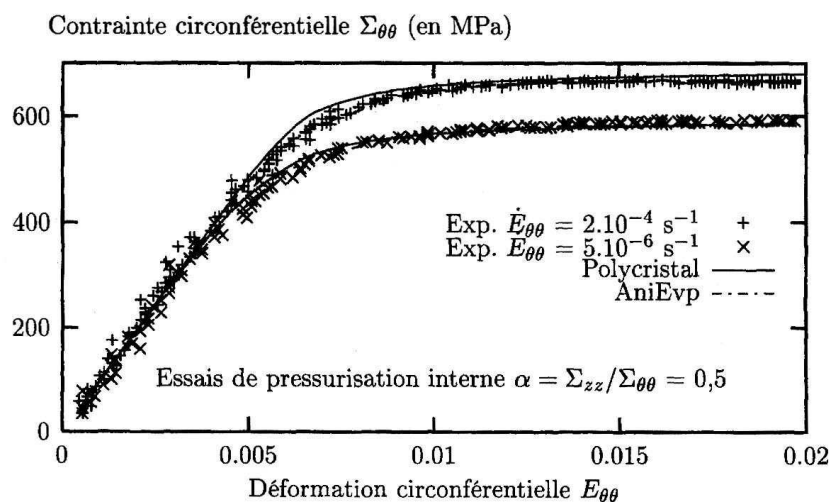


FIG. 4 - Essais d'écroutissage en pressurisation interne - Zircaloy-4 détendu irradié durant 2 cycles.

43<sup>e</sup> COLLOQUE DE MÉTALLURGIE

Pr1-117

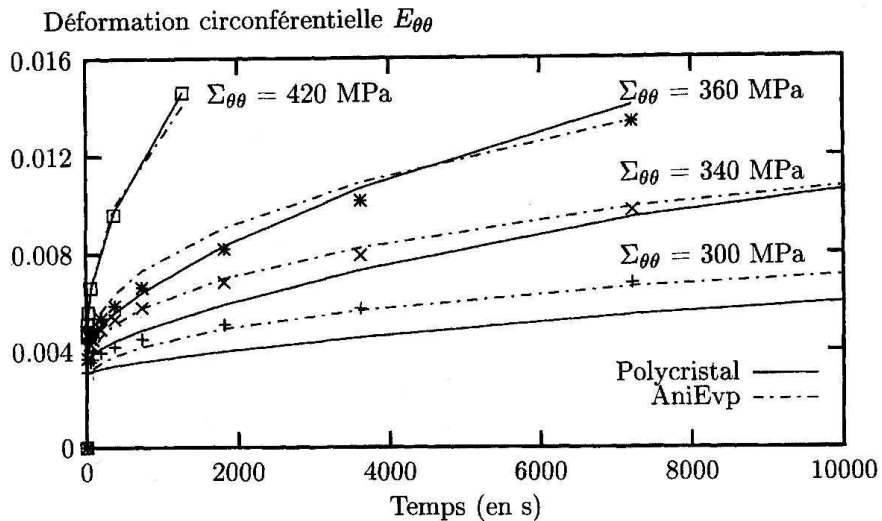


FIG. 5 - Fluage en pressurisation interne - Zircaloy-4 détendu non irradié.

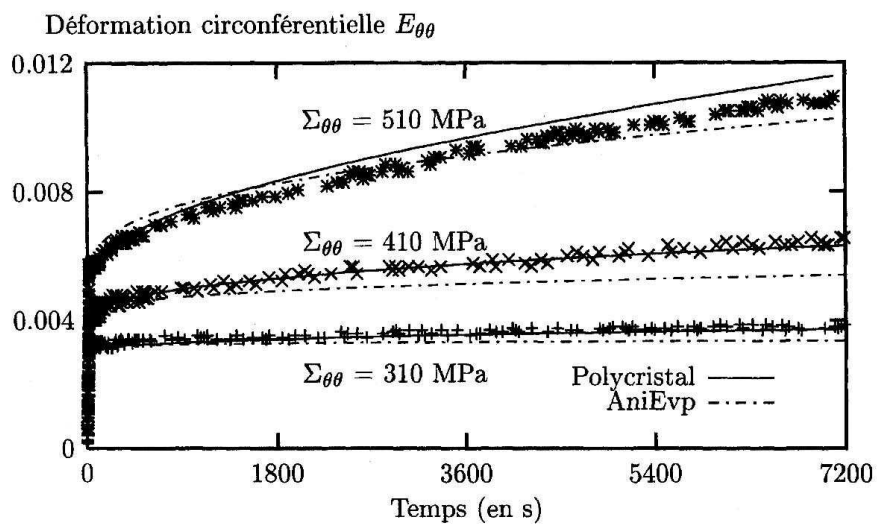


FIG. 6 - Essais de fluage en pressurisation interne - Zircaloy-4 détendu irradié durant 2 cycles.



Pr1-118

## JOURNAL DE PHYSIQUE IV

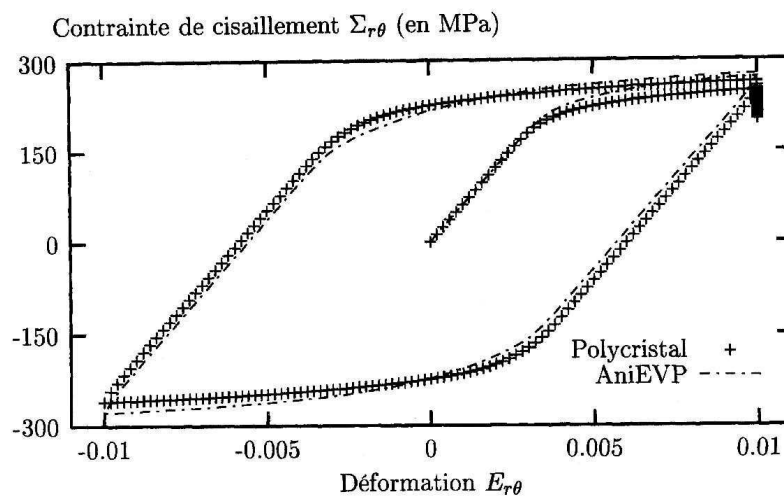


FIG. 7 – Essai cyclique « numérique » en cisaillement - Zircaloy-4 détendu non irradié.

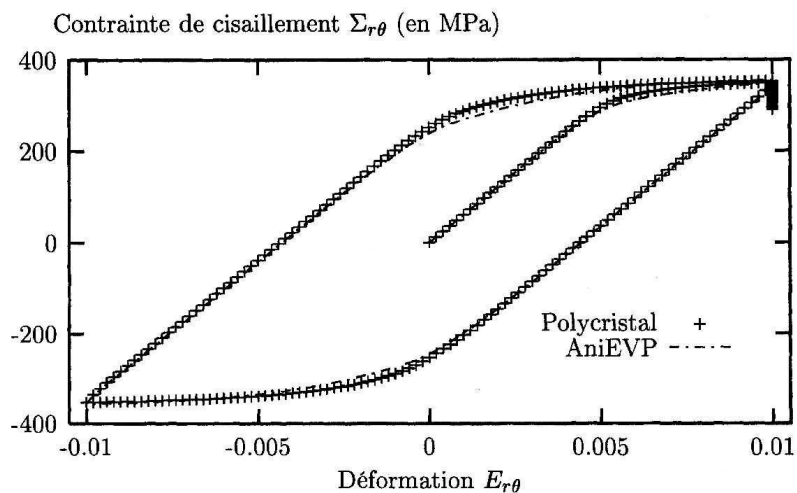


FIG. 8 – Essai cyclique « numérique » en cisaillement - Zircaloy-4 détendu irradié durant 2 cycles.

## CHAPITRE V - ANNEXE D

365

## MECHANICAL MODELLING OF ZIRCALOY-4 BEHAVIOR

O. FANDEUR<sup>(1,2)</sup>, R. LIMON<sup>(1)</sup>, Ph. PILVIN<sup>(2)</sup>, and C. PRIOUL<sup>(2)</sup>*(1) CEA - Centre de Saclay, DRN/DMT/SEMI/LEMO,  
F-91191 Gif-sur-Yvette Cedex, France**(2) École Centrale Paris, Laboratoire MSS-Mat (UMR CNRS 8579),  
Grande Voie des Vignes, F-92295 Châtenay-Malabry Cedex, France*

## ABSTRACT

The predictive capacity of a phenomenological macroscopic model is limited by the experimental database used to identify this model. Then, to improve the Zircaloy-4 mechanical behavior description, it should be necessary to introduce new data to better identify the model used, but some results cannot be technically obtained. Nevertheless, knowing the metal plasticity mechanisms, a good mechanical behavior description is possible by introducing a micromechanical approach. The results of such a model can therefore be used to improve the predictive capacity of phenomenological models by adding new informations. By this way, the evolution of the Zircaloy-4 anisotropy upon irradiation has been studied.

## KEYWORDS

Zirconium alloys, anisotropy, viscoplasticity, polycrystalline model, crystallographic slip

## INTRODUCTION

In Pressurized Water Reactor (PWR), power control operations are designed to avoid clad failure. Indeed, during severe power transients, fuel pellet fragmentation and the Pellet Cladding Interaction (PCI) can induce Stress Corrosion Cracking (SCC) of the cladding tube. A better understanding and forecast of the clad damage accumulation could then allow to improve nuclear power plant performances. Studying Stress Corrosion Cracking of the cladding tube requires a correct description of stress and strain fields and therefore a good knowledge of the material constitutive equations. The study of cracked structures needs to take into account the material anisotropy, particularly in the crack vicinity. A phenomenological elastoviscoplastic anisotropic model can be used but a complete mechanical behavior description is not possible because of the clad geometry. This paper shows how this description can be improved by introducing a micromechanical approach. The identification of a polycrystalline model allows to enrich the experimental database with simulated results that could not be obtained, especially on irradiated material. Therefore a complete identification of the material anisotropy is possible and a correct description of irradiated Zircaloy-4 cladding tube mechanical behavior is obtained.

## MATERIAL DESCRIPTION

The material studied is Cold-Worked Stress-Relieved (CWSR) low-tin content Zircaloy-4, which is commonly used for fuel claddings in PWR. Its chemical composition in weight percent is 1.32% Sn, 0.21% Fe, 0.10% Cr, 0.12% O, Zr balance, in agreement with the ASTM B 350.90 specification. The cladding tube geometry is defined by a 9.5-mm outside diameter and a 0.57-mm thickness. The irradiated specimens were cut from a fuel rod which had been irradiated during two operating cycles in a French PWR. Due to its fabrication processing, CWSR Zircaloy-4 shows a very pronounced crystallographic texture as seen on Fig. 1. This texture does not seem to be significantly modified by irradiation under neutronic flux [1]. The microstructure of the stress-relieved metallurgical state is characterized by elongated grains along the rolling direction, which corresponds to the cladding tubes axial direction. The grain size is  $20\mu\text{m}$  long in the rolling direction and  $2\mu\text{m}$  wide in the transverse direction.

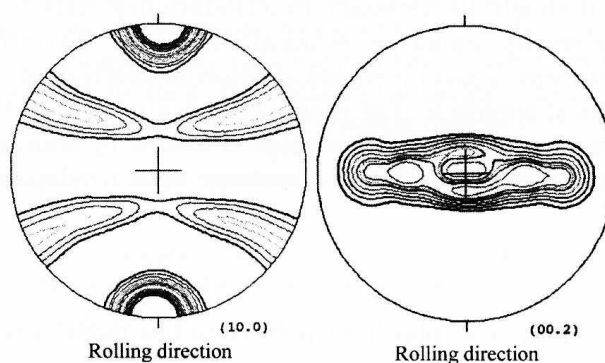


Figure 1: Tube pole figures  $(10\bar{1}0)$  prismatic plane (left),  $(0002)$  basal plane (right) [1].

The texture and the hexagonal close-packed lattice imply a strong anisotropic mechanical behavior. Assuming that anisotropic and texture axis are identical, Zircaloy-4 tubes then have an orthotropic behavior whose directions correspond respectively to the radial, hoop, and axial directions. In spite of this pronounced anisotropy, the elastic behavior can be considered to be isotropic. According to the observations [1], the elastic parameters (Young's modulus  $E$  and Poisson's ratio  $\nu$ ) are considered to be only function of temperature and not of irradiation parameters.

## MECHANICAL TESTS DESCRIPTION

Table 1 gathers the different mechanical tests achieved on irradiated material. All these tests have been performed at the same temperature of  $350^\circ\text{C}$ . In the internal pressurization tests, the sample tube is closed and then the ratio  $\alpha$  between the axial and hoop stresses ( $\alpha = \sigma_{zz}/\sigma_{\theta\theta}$ ) is equal to 0.5. The total strain upper limit considered (hoop strain for internal pressurization tests, axial strain in other cases) is 0.02, which satisfies the small deformations hypothesis. For creep tests, only the first two hours have been taken into account even if the test duration is longer. At  $350^\circ\text{C}$  Zircaloy-4 presents a viscoplastic

behavior and, more particularly, an high viscosity for the studied strain rate range.

Table 1. Experimental database on irradiated material cladding

- Internal pressure tensile tests ( $\alpha=0.5$ ) for different imposed hoop strain rates:  
 $d\varepsilon_{\theta\theta}/dt = 5.10^{-6}$ ,  $2.10^{-5}$  and  $2.10^{-4} \text{ s}^{-1}$ .
- Internal pressure creep tests ( $\alpha=0.5$ ) for different hoop stress levels:  
 $\sigma_{\theta\theta}$  is ranging from 300 to 510 MPa.
- Monotonic axial tensile tests:  
the axial strain rate is variable during the test.

#### MICROSCOPIC MODELLING: A POLYCRYSTALLINE APPROACH

This section deals with the polycrystalline model used to describe the mechanical behavior of irradiated Zircaloy-4. This micromechanical approach has already been used for recrystallized non-irradiated Zircaloy-4 [2] and consists in evaluating the macroscopic behavior of a Representative Elementary Volume (some thousand grains) knowing the crystalline plasticity at the grain scale. A "phase" collects all the grains which have the same orientation. Then the three Euler's angles and the volume fraction  $f_g$  are sufficient to define a phase. In this representation, the spatial distribution and the neighbourhood of each grain are not considered. The relations between macroscopic state variables ( $E$ ,  $E^{vp}$ ,  $\Sigma$ ) and the microscopic variables defined for each grain ( $\varepsilon$ ,  $\varepsilon_g^{vp}$ ,  $\sigma_g$ ), are, assuming that elasticity (given by the stiffness tensor  $\tilde{C}_e$ ) is isotropic and homogeneous, in the case of small deformations:

$$\Sigma = \sum f_g \sigma_g \quad (1) \quad \Sigma = \tilde{C}_e : (E - E^{vp}) \quad (3)$$

$$\dot{E}^{vp} = \sum f_g \dot{\varepsilon}_g^{vp} \quad (2) \quad \sigma_g = \Sigma + \tilde{C}_e : (\tilde{I} - \tilde{S})(\sum f_g \beta_g - \beta_g) \quad (4)$$

The ellipsoidal grain shape is integrated in the localisation rule (called  $\beta$  rule) through the Eshelby's tensor  $\tilde{S}$ . The heuristic "grain accommodation variable"  $\beta_g$  models the incompatibilities between phases [3]. Its evolution is given by:

$$\dot{\beta}_g = \dot{\varepsilon}_g^{vp} - D \sqrt{\frac{2}{3} \dot{\varepsilon}_g^{vp} : \dot{\varepsilon}_g^{vp}} (\beta_g - \delta \varepsilon_g^{vp}) \quad (5)$$

Inside a grain (or a phase), the inelastic deformation  $\dot{\varepsilon}_g^{vp}$  is only the consequence of the crystallographic slip. The slip systems that can be activated in Zircaloy-4 at 350°C are the basal, prismatic and pyramidal slip modes. All these systems have the same Burgers vector  $b^{(s)} \vec{l}^{(s)}$  equal to  $\langle a \rangle$ . To account for deformation along the c-axis, the pyramidal slip modes whose Burgers vector is  $\langle c+a \rangle$  can be activated. The Schmid's orientation tensor is defined by  $m^{(s)} = \frac{1}{2}(\vec{n}^{(s)} \otimes \vec{l}^{(s)} + \vec{l}^{(s)} \otimes \vec{n}^{(s)})$ , where  $\vec{n}^{(s)}$  is the normal to the slip plane ( $s$ ). Kinematic hardening  $X_g = 2\mu c_{ig} \alpha_g$  ( $\mu$  shear modulus) helps to represent intergranular heterogeneity via an Armstrong-Frederick's law.

$$\dot{\alpha}_g = \dot{\varepsilon}_g^{vp} - d_{ig} \left( \sqrt{\frac{2}{3} \dot{\varepsilon}_g^{vp} : \dot{\varepsilon}_g^{vp}} \right) \alpha_g - \left( \frac{\sqrt{\frac{2}{3} X_g : X_g}}{M} \right)^m \alpha_g \quad (6)$$

On a particular slip system ( $s$ ), the effective shear stress  $\tau^{(s)}$ , the critical shear stress  $\tau_c^{(s)}$  and the slip rate  $\dot{\gamma}^{(s)}$  are linked by the following viscoplastic law according to a generalized Schmid's law:

368

$$\tau^{(s)} = (\sigma_g - X_g) : m^{(s)} \quad (7)$$

$$\dot{\gamma}^s = 2\dot{\gamma}_0^{(s)} \sinh\left(\frac{(|\tau^{(s)}| - \tau_c^{(s)})V_0^{(s)}}{k_B T}\right) \text{sign}(\tau^{(s)}) \text{ if } |\tau^{(s)}| > \tau_c^{(s)}, \dot{\gamma}^s = 0 \text{ otherwise} \quad (8)$$

where  $V_0^{(s)}$  is the activation volume. Dislocation densities  $\rho^{(s)}$  are introduced to take into account the physical origin of hardening and to model the evolution of the critical shear stress.

$$\tau_c^{(s)} = \tau_0^{(s)} + A_0^{(s)} \mu b^{(s)} \sqrt{\sum_u \rho^{(u)}} \quad (9) \quad \dot{\rho}^{(s)} = \frac{|\dot{\gamma}^{(s)}|}{b^{(s)}} \left( \frac{1}{L^{(s)}} - G_0^{(s)} b^{(s)} \rho^{(s)} \right), \rho^{(s)}(t=0) = \rho_0^{(s)} \quad (10)$$

$\tau_0^{(s)}$  is the initial critical shear stress,  $\rho_0^{(s)}$  the initial density and  $L^{(s)}$  the mean free path of mobile dislocations on the system  $(s)$ .  $G_0^{(s)}$  is linked to dislocations annihilation.

The viscoplastic coefficients are  $D$ ,  $\delta$ ,  $c_{ig}$ ,  $d_{ig}$ ,  $M$ ,  $m$ , and, for each slip system mode,  $\dot{\gamma}_0^{(s)}$ ,  $V_0^{(s)}$ ,  $\tau_0^{(s)}$ ,  $L^{(s)}$ ,  $G_0^{(s)}$ ,  $\rho_0^{(s)}$ . In the following,  $\rho_0^{(s)}$  is assumed to be identical whatever the slip system is.

#### MACROSCOPIC SCALE: A PHENOMENOLOGICAL APPROACH

The macroscopic phenomenological models described below have been used to model the 316L-steel mechanical behavior [4] and adapted to the case of Zircaloy-4 [5]. In the small deformations case, the total strain  $\varepsilon$  is the sum of an elastic strain  $\varepsilon_e$  (considered to be isotropic) and a viscoplastic strain  $\varepsilon_{vp}$ . The stress  $\sigma$  is also splitted into two parts: a viscous stress  $\sigma_v$  and an internal stress  $\alpha$ . The kinematic hardening is described by two deviatoric internal stresses  $\alpha$  and  $\alpha_1$  which integrate, on the one hand, the dynamic recovery and, on the other hand, the static recovery of the material. Isotropic hardening  $Y$  is also modelled. The anisotropy is introduced by the three fourth-order tensors  $\tilde{M}$ ,  $\tilde{N}$ , and  $\tilde{R}$ , which are supposed to be constant and diagonal in the anisotropic axis.

$$\sigma_v = (\sigma - \alpha)_{eq} = \sqrt{\frac{3}{2} \text{dev}(\sigma - \alpha) : \tilde{M} : \text{dev}(\sigma - \alpha)}, \text{dev}(x) \text{ is the deviator of } x \quad (11)$$

$$\dot{\varepsilon}_{vp} = \frac{3}{2} \dot{\varepsilon}_{eq} \frac{\text{dev}(\tilde{M}(\sigma - \alpha))}{\sigma_v} \text{ where } \dot{\varepsilon}_{eq} = \dot{\varepsilon}_0 \left[ \sinh\left(\frac{\sigma_v}{N}\right) \right]^n \quad (12)$$

$$\dot{\alpha} = \text{dev}\left(p\tilde{N} : \left(\frac{2}{3}Y^*\dot{\varepsilon}_{vp} - \dot{\varepsilon}_{eq}[\alpha - \alpha_1]\right) - r_{m0} \left[ \sinh\left(\frac{\alpha_{eq}}{\alpha_0}\right) \right]^{m_0} \frac{\tilde{N} \cdot \tilde{R} : \alpha}{\alpha_{eq}}\right), \alpha_{(t=0)} = 0 \quad (13)$$

$$\dot{\alpha}_1 = \text{dev}\left(p_1\tilde{N} : \left(\frac{2}{3}Y^*\dot{\varepsilon}_{vp} - \dot{\varepsilon}_{eq}\alpha_1\right)\right), \alpha_{eq} = \sqrt{\frac{3}{2}\alpha : \tilde{R} : \alpha}, \alpha_{1(t=0)} = 0 \quad (14)$$

$$Y^* = Y_0 + Y, \dot{Y} = b(Y_{sat} - Y), Y_{(t=0)} = 0 \quad (15)$$

The material viscoplasticity is defined by 11 coefficients  $\dot{\varepsilon}_0$ ,  $N$ ,  $n$ ,  $p$ ,  $p_1$ ,  $r_{m0}$ ,  $m_0$ ,  $\alpha_0$ ,  $Y_0$ ,  $b$ ,  $Y_{sat}$  and three tensors (defined each by 6 coefficients). For the isotropic model, these three tensors are equal to the identity  $\tilde{I}$ .

## IDENTIFICATION RESULTS AND SIMULATIONS

The isotropic model (labelled as IsoEVP) has been identified with the internal pressure tests only, whereas the whole experimental database has been used for the polycrystalline model identification (labelled as Poly). In agreement with the observations [6], a correct polycrystalline model identification shows that the basal slip system is the most activated slip system in irradiated clad material, whereas the prismatic slip system is usually observed as the primary slip mode in non-irradiated material and no (or a few) basal slip is seen. Figures 2 to 4 show that few differences appear between both models and the available experimental results. At the opposite, for the axial tests, the transverse deformation evolution (obtained by simulation) is quite different between the polycrystalline and isotropic phenomenological models (Fig. 5).

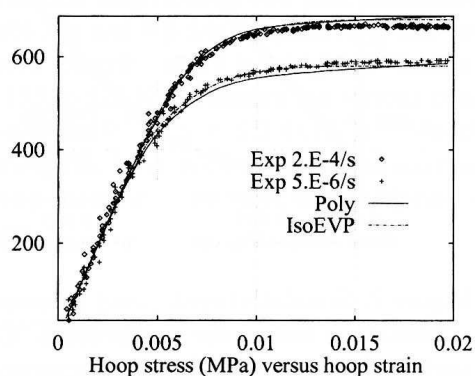


Figure 2: Hoop stress/strain evolution during internal pressure tests at two strain rates. Comparison between models and experience.

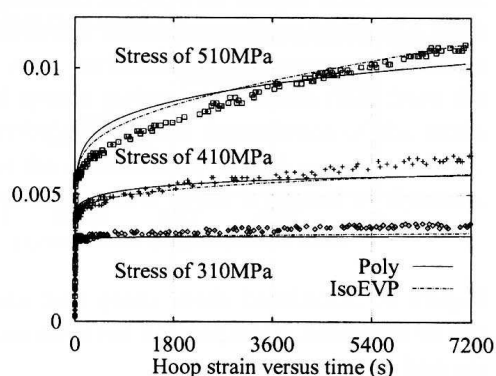


Figure 3: Influence of hoop stress on creep under internal pressure. Comparison between models and experience.

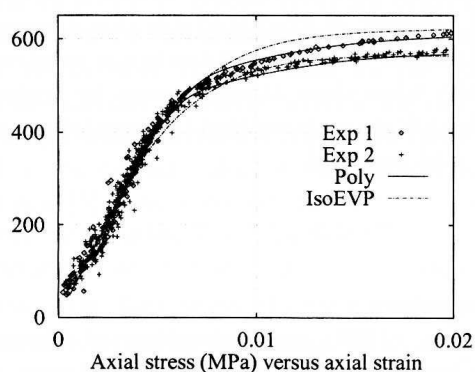


Figure 4: Axial stress/strain evolution during axial tensile tests. Comparison between models and experience.

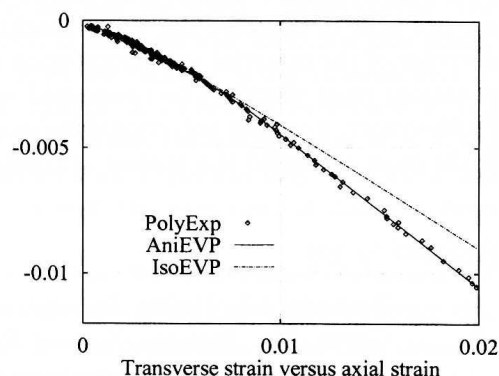


Figure 5: Transverse strain versus axial strain evolution during axial tensile test. Comparison between models.

The experimental database can be enriched with new results obtained by the identified polycrystalline model in order to carry out a complete identification of the anisotropic model (labelled as AniEVP). Creep tests (at two stress levels) and cyclic loading followed by a relaxation tests have been simulated for each shear direction and introduced in this

new "experimental" database. Figure 6 presents a comparison between the two macroscopic models and a simulated shear creep curve obtained through the polycrystalline model (labelled as PolyExp). This figure shows that, in that case, a large difference exists between the results of both macroscopic models. On the other hand, no difference can be revealed on Fig. 7 between models and "experimental" data for a cyclic loading-relaxation test in an other shear direction than before (Fig. 6). A decrease of the material anisotropy upon irradiation is evidenced by comparing the anisotropic model identification results obtained here and by [5].

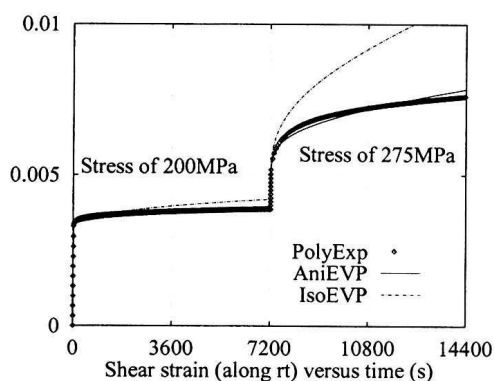


Figure 6: Simulated shear creep test along the  $r\theta$  direction. Comparison between models and "experience".

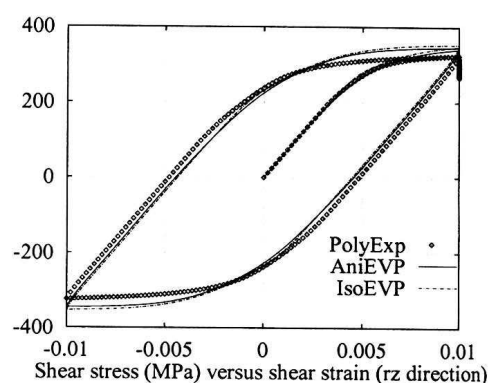


Figure 7: Simulated cyclic load followed by a relaxation test in the  $rz$  direction. Comparison between models and "experience".

## CONCLUSION

This study shows that an enriched database can be built by introducing the results given by a polycrystalline model. This allows to point out that isotropic constitutive equations are not able to describe the whole mechanical behavior of irradiated Zircaloy-4, even if a decrease of the material anisotropy upon irradiation is evidenced. Anisotropic constitutive equations must therefore be considered especially when shear strains cannot be neglected. Furthermore, a correct polycrystalline model identification shows that the basal slip system is the most activated slip system in irradiated clad material.

## REFERENCES

1. Béchade, J.L. (1999), *Private communication*.
2. Geyer, Ph., Feaugas, X., and Pilvin, Ph. (1999), in: *Proceedings of Plasticity'99: 7<sup>th</sup> Symposium on Plasticity and its Current Applications*, Cancun, Mexico.
3. Pilvin Ph. (1996), in: *Multiaxial Fatigue and Design, ESIS 21*, pp. 3-19, A. Pineau, G. Cailletaud and T.C. Lindley (Eds), MEP, London. United Kingdom.
4. Delobelle, P. (1993), *Int. J. Plast* 9, pp. 87-118.
5. Schäffler-Le Pichon, I., Geyer, Ph., Bouffieux, P., and Delobelle, P. (1997), in: *Transactions of the 14<sup>th</sup> SMIRT*, Lyon, France.
6. Lefebvre, F., Lemaignan, C., Regnard, C., Rouillon, L., Magnin, T., Frégonèse, M., (1998), in: *12<sup>th</sup> International Symposium on Zirconium in the Nuclear Industry*, Toronto, Canada.

***PARTIE C***

***CORROSION SOUS CONTRAINTE  
DU ZIRCALOY-4 DÉTENDU À 350 °C***

***ÉTUDE EXPÉRIMENTALE ET MODÉLISATION***





## **CHAPITRE VI.**

### **ÉTUDE EXPÉRIMENTALE DE LA CORROSION**

### **SOUS CONTRAINTE DES ALLIAGES DE ZIRCONIUM**

## **1 INTRODUCTION**

La multiplicité et la complexité des phénomènes régnant en réacteur ne permettent pas une analyse aisée des seuls mécanismes de corrosion sous contrainte de la gaine, même lors d'études plus « analytiques » en réacteur expérimental (cf. chapitre II). Il est alors indispensable de réaliser des études plus fondamentales en laboratoire, où il est plus facile de maîtriser les différents paramètres chimiques et mécaniques pouvant intervenir dans le processus de corrosion sous contrainte. Ces études, souvent paramétriques, ont pour objectif premier de déterminer la loi de fissuration par CSC de la gaine, mais surtout doivent permettre d'étudier le ou les paramètres mécaniques intervenant au premier ordre dans la propagation d'un défaut de CSC. La corrosion sous contrainte est un phénomène très localisé et il apparaît nécessaire de disposer d'un maximum d'informations très locales. Cependant, au cours d'un essai, les données expérimentales mesurables et/ou pilotables restent des grandeurs définies à l'échelle de l'éprouvette, alors que nous souhaiterions accéder à des grandeurs plus locales, c'est-à-dire en pointe de fissure, que seule une simulation numérique permet d'évaluer. En conséquence, nous allons, au cours de ce chapitre, nous intéresser à l'étude expérimentale de la corrosion sous contrainte par l'iode du Zircaloy-4 à l'état détendu, étude que nous couplerons à une analyse par éléments finis, afin d'étudier le rôle des divers paramètres mécaniques sur le processus de fissuration. Rappelons qu'à la suite de notre étude bibliographique de la partie A, le paramètre vitesse de déformation viscoplastique semble jouer un rôle clé dans la CSC des alliages de zirconium. Nous tenterons donc, expérimentalement à l'aide d'un nouvel essai de CSC et numériquement, de mettre en avant ce point important.

## **2 ÉTUDE EXPÉRIMENTALE DE LA CORROSION SOUS CONTRAINTE**

Parmi la multitude d'essais envisageables pour étudier la corrosion sous contrainte, l'essai de pressurisation interne est un essai bien adapté à la géométrie tubulaire des gaines, notamment, compte tenu de la faible disponibilité en alliages irradiés. Il est très usité, comme nous avons pu le voir au chapitre précédent, pour caractériser le comportement mécanique anisotrope des alliages de zirconium. C'est un essai technologiquement « simple », pouvant être conduit avec un environnement chimique inerte ou agressif (saturé en iode vapeur), pour lequel l'état mécanique régnant au sein de ce tube non fissuré et peu épais peut être facilement modélisé (considéré comme homogène en première approche). Notons que certains essais sont réalisés sur des anneaux. Bien que moins consommateurs de matière, ces essais restent plus difficiles à interpréter (gradients des champs mécaniques importants) et sont sensibles à d'autres paramètres expérimentaux (frottement entre l'anneau et le mandrin...).

### **2.1 PRÉSENTATION DES ESSAIS DE PRESSURISATION INTERNE**

Nous allons décrire, dans ce paragraphe, les conditions expérimentales dans lesquelles sont réalisés au CEA les essais de CSC en pressurisation interne. Les machines et le protocole expérimental sont identiques, que les essais soient réalisés sur des alliages de zirconium irradiés ou non, à l'exception toutefois de la disposition horizontale des tubes irradiés et verticale pour les éprouvettes non irradiés.

### Éprouvette de pressurisation interne

L'éprouvette de pressurisation interne est un tronçon de gaine de 135 mm de longueur. Après la mise en place du système mécanique d'étanchéité, la longueur utile est estimée à 100 mm. La figure VI-1 montre une éprouvette prête à être testée.



FIG. VI-1. Éprouvette de pressurisation interne.

### Protocole expérimental

Les différentes étapes du protocole de réalisation d'un essai de CSC en pressurisation interne sont les suivantes.

1. Préparation de l'éprouvette (découpe, métrologie initiale, mise en place du système d'étanchéité). Le maximum de précaution est pris pour ne pas rayer la surface interne des tubes lors de ces différentes manipulations.
2. Préparation de l'iode. L'iode bisublimé est pesé (environ 75 mg) puis déposé dans un creuset en zirconium. Ce dernier est placé dans le tube qui est alors scellé puis mis en place sur la machine d'essai. Cette étape doit être réalisée (sous hotte) en moins de *cinq minutes*, afin d'éviter au maximum la pollution de l'iode (espèce très hydrophile) par l'air et l'humidité ambiants ; le conditionnement de l'iode sous forme de billes permet également de diminuer ces interactions chimiques avec l'environnement.
3. Une séquence de rinçages à l'hélium et de vides primaires est ensuite effectuée afin de diminuer au maximum, à l'intérieur du tube, l'oxygène résiduel. Cette séquence dure environ *dix minutes*. Seul un vide primaire est réalisé afin d'éviter une vaporisation trop importante de l'iode<sup>1</sup> lors d'un vide secondaire.
4. Mise en température. Avant l'enfournement de l'éprouvette, celle-ci est pressurisée entre 5 et 10 bars afin de détecter une éventuelle fuite. Sur la longueur utile de l'éprouvette, le gradient thermique, qui est régulièrement vérifié, reste inférieur à 5 °C, la température étant maximale au centre de l'éprouvette ( $350 \pm 1$  °C). De plus, un contrôle visuel de la couleur de la couche d'oxyde externe permet de vérifier l'uniformité du champ de température sur l'éprouvette. Nous avons imposé que l'essai débute *exactement 60 minutes* après l'enfournement du tube ; la température d'essai est stationnaire sur l'éprouvette après 20 minutes. On peut estimer que cette durée (60 min) est suffisante pour l'établissement préalable d'équilibres chimiques (se reporter au chap. III, § 2.1).
5. Réalisation de l'essai de pressurisation interne en milieu inerte (hélium seul) ou agressif (hélium et iode vapeur *en saturation*). Les variations de pression sont réglées et s'effectuent à la vitesse constante de  $2 \text{ bar.s}^{-1}$ . La durée maximale d'un essai en milieu corrosif est, sauf exception, fixée à *100 heures* et le tube est alors considéré comme non rompu.
6. Examens postopératoires (métrologie, observations MEB, etc.).

Faisons maintenant quelques remarques complémentaires.

- Lors de l'enfournement du tube et jusqu'à son défournement en fin d'essai, une circulation d'argon est assurée dans le four à l'extérieur de l'éprouvette<sup>2</sup>. Toutefois, l'atmosphère externe reste oxydante (présence d'une couche d'oxyde externe sur le tube) et il arrive parfois que les faciès de rupture soient oxydés, rendant leurs observations très difficiles.

<sup>1</sup> L'iode a une faible tension de vapeur, même à la température ambiante (40,6 Pa à 25 °C et 1300 Pa à 350 °C).

<sup>2</sup> Le débit d'argon est d'environ 12 l.h<sup>-1</sup> ; au-delà de cette valeur, le gradient thermique régnant le long du tube est très fortement perturbé.

- Lors d'une montée en pression dans l'éprouvette, la compression de l'hélium entraîne une augmentation temporaire de la température de l'éprouvette, environ 5 °C à la vitesse de 2 bar.s<sup>-1</sup>, comme le montre la figure VI-2 ci-dessous. Inversement, une baisse de pression entraîne une diminution temporaire de la température. Nous pouvons considérer que les essais que nous réalisons (sur alliages irradiés ou non) se font à température constante. Une vitesse de variation de pression plus élevée (plus proche des sollicitations vues par la gaine en réacteur lors d'un transitoire de puissance) impliquerait un écart de température plus important (environ 20 °C pour une vitesse de 10 bar.s<sup>-1</sup>). Ceci ne serait pas sans conséquence sur le comportement viscoplastique du matériau (par exemple, influence du vieillissement dynamique des alliages de zirconium, recristallisation partielle du matériau ou recuit des défauts d'irradiation suivant la température d'essai).

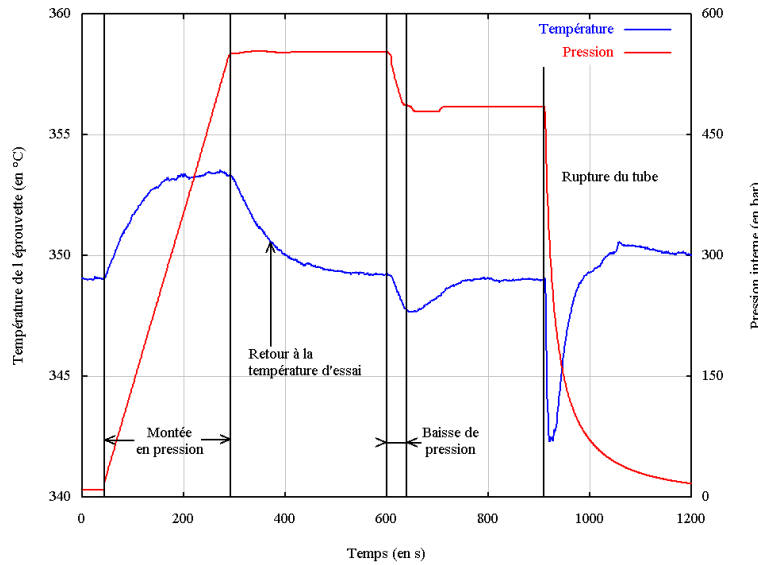


FIG. VI-2. Variations de température de l'éprouvette liées à des variations de la pression interne.

#### Acquisition et dépouillement des données expérimentales

La pression interne  $p$  et la température  $T$  de l'éprouvette<sup>3</sup> (sur la face externe de celle-ci) sont enregistrées au cours de l'essai.

Connaissant la pression interne, nous en déduisons alors les *contraintes résultantes*<sup>4</sup> appliquées au niveau de la *surface interne du tube*, en tenant compte de l'effet de fond :

$$\Sigma_{\theta\theta} = p \frac{R_e^2 + R_i^2}{R_e^2 - R_i^2}, \Sigma_{zz} = p \frac{R_i^2}{R_e^2 - R_i^2} \text{ et } \Sigma_{rr} = -p,$$

avec  $R_e$  et  $R_i$  respectivement rayons extérieur et intérieur du tube.

Par la suite, nous ne présenterons uniquement les résultats qu'en fonction de la contrainte  $\Sigma_{\theta\theta}$ .

La machine d'essais, ainsi que l'éprouvette, ne sont pas instrumentées pour mesurer les variations dimensionnelles du tube (longueur axiale  $L_z$  du tube et de son diamètre externe) au

<sup>3</sup> Suite au déménagement de la machine d'essais sur alliages non irradiés du CEA Grenoble vers le CEA Saclay, nous avons équipé le dispositif avec deux thermocouples supplémentaires aux extrémités de la longueur utile de l'éprouvette, en plus du thermocouple situé au centre du tube. Nous disposons ainsi de trois mesures de la température.

<sup>4</sup> En cohérence avec la littérature, ce sont ces formules qui sont utilisées pour « dimensionner » l'essai, c'est-à-dire déterminer la pression interne à imposer pour obtenir la contrainte  $\Sigma_{\theta\theta}$  souhaitée. Il est important de noter que ces contraintes sont calculées dans le cadre de l'élasticité isotrope. Par rapport à la contrainte circonférentielle moyenne (voir chap. V, § 5), les écarts restent faibles, inférieurs à 7 %.

cours de l'essai. Nous ne pouvons accéder qu'aux *déformations finales* (moyennes) suite aux métrologies effectuées avant et après l'essai,  $\Delta L_z$ ,  $\Delta R_e$  représentant les variations respectives de  $L_z$  et  $R_e$  au cours de l'essai :

$$E_{\theta\theta}^{vp} = \frac{\Delta R_e}{R_e} \left( \text{ou } \frac{\Delta R_e}{\frac{1}{2}(R_e + R_i)} \right), \quad E_{zz}^{vp} = \frac{\Delta L_z}{L_z} \quad \text{et} \quad E_{\pi\pi}^{vp} = \frac{\Delta(R_e - R_i)}{R_e - R_i}.$$

Pour les éprouvettes en alliages non irradiés, les mesures du diamètre extérieur et de l'épaisseur sont effectuées par métrologie Laser (12 points de mesure), permettant de vérifier l'homogénéité de la déformation ; les variations axiales du tube sont estimées par mesure (au pied à coulisse) de la longueur totale du tube. Pour certains tubes, un réseau d'empreintes de microdureté a été réalisé sur la surface externe du tube afin d'accéder à des mesures plus locales et mettre éventuellement en évidence une surdéformation axiale au niveau de la fissure débouchante. Par contre, sur matériaux irradiés, seules les mesures du diamètre externe sont accessibles par métrologie Laser (une cartographie le long de plusieurs génératrices est obtenue, pouvant ainsi mettre en évidence une éventuelle localisation de la déformation circonférentielle). Les métrologies Laser après essai ne sont pas effectuées lorsque le tube s'est rompu par éclatement (instabilité plastique) ; seule une mesure manuelle est réalisée pour évaluer la déformation « homogène » du tube.

Nous pouvons évaluer, lorsque cela est légitime, une *vitesse de déformation viscoplastique moyenne*  $(\dot{E}_{\theta\theta}^{vp})_{\text{moy}} = E_{\theta\theta \text{ exp}}^{vp} / t_r$ , où  $t_r$  correspond à la durée de l'essai (en général le temps à rupture).

Il est possible de définir un paramètre de *sensibilité à la CSC* par :  $S_{\text{CSC}} = |(t_r(\text{hélium}) - t_r(\text{iode})) / t_r(\text{hélium})|$ , où  $t_r(\text{hélium})$  et  $t_r(\text{iode})$  correspondent aux temps à rupture obtenus pour le même essai réalisé en milieux respectivement inerte et corrosif. Plus  $S_{\text{CSC}}$  est proche de 1, plus la sensibilité est importante.

## 2.2 DESCRIPTION DES ESSAIS RÉALISABLES - PROPOSITION D'UN NOUVEL ESSAI DE CSC

Nous allons maintenant nous attacher à décrire les chargements en pression interne qui ont été réalisés.

- L'essai dit « **conventionnel** », qui consiste simplement en un essai de fluage en pressurisation interne (fig. VI-3). Nous avons nommé cet essai ainsi par référence avec la littérature, puisqu'il s'agit de l'essai le plus utilisé pour étudier la sensibilité à la CSC par l'iode des alliages de zirconium (par exemple [Lunde et Videm 1980, Cox 1990 b, Bibilashvili et al. 1995]). Les résultats de ces essais servent ensuite de référence.
- L'essai dit de « **charge/décharge** », dont le but est d'étudier expérimentalement le rôle des différents paramètres mécaniques sur la propagation en CSC et de tenter de mettre en avant le (ou les) paramètre(s) mécanique(s) pertinent(s). Le trajet de chargement en pression interne retenu, présenté à la figure VI-4, est simple. Il consiste, dans un premier temps, à maintenir la contrainte circonférentielle à une valeur donnée  $\Sigma_H$ , dite « contrainte haute », durant un laps de temps prédéfini  $T$ , appelé durée de « palier haut », puis, dans un second temps, à diminuer la contrainte jusqu'à la contrainte dite « basse »  $\Sigma_B$ , qui est maintenue jusqu'à la rupture du tube. De plus, cet essai est réalisable expérimentalement sur alliages irradiés et non irradiés sans qu'aucune modification du dispositif expérimental ne soit nécessaire.

Pour éviter toute interprétation hâtive, chaque type d'essai est réalisé dans les mêmes conditions plusieurs fois, nous permettant ainsi d'estimer les incertitudes expérimentales.

Sur le dispositif expérimental, sont testées des éprouvettes saines et d'autres préfissurées par fatigue-corrosion (que nous décrirons plus en détail dans le prochain chapitre). Les essais de pressurisation interne réalisés sur les tubes sains font intervenir les étapes d'amorçage et de propagation des fissures de CSC, tandis que les essais sur tubes préfissurés ne concernent que l'étape de propagation (il est alors possible d'accéder à une vitesse moyenne de propagation d'un défaut de CSC).

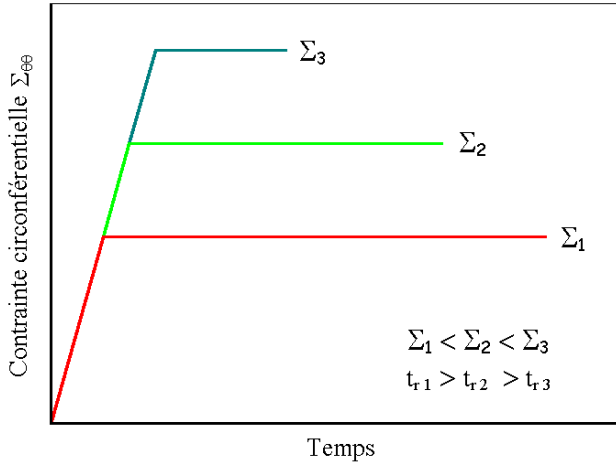


FIG. VI-3. Définition de l'essai « conventionnel ».

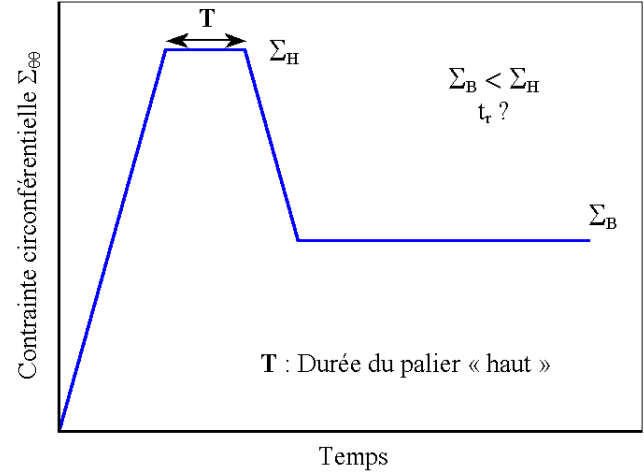


FIG. VI-4. Description de l'essai de « charge/décharge ».

Revenons maintenant à l'essai de « charge/décharge ». Illustrons, à l'aide de simulations par éléments finis, les effets du « palier » haut sur les paramètres mécaniques par comparaison avec des essais « conventionnels ». Les conditions retenues pour les simulations sont les suivantes :

- Le matériau étudié est le Zircaloy-4 détendu irradié deux cycles, dont nous avons identifié le comportement à 350 °C au chapitre précédent.
- Les essais « conventionnels », de référence, sont des essais de fluage aux contraintes circconférentielles de 200 MPa et 400 MPa.
- L'essai de « charge/décharge » simulé consiste en surcharge simple, sans « palier haut » ( $T = 0$  s) pour les niveaux de contrainte  $\Sigma_H = 400$  MPa et  $\Sigma_B = 200$  MPa.

Les résultats obtenus sur tubes sains sont présentés à la figure VI-5.

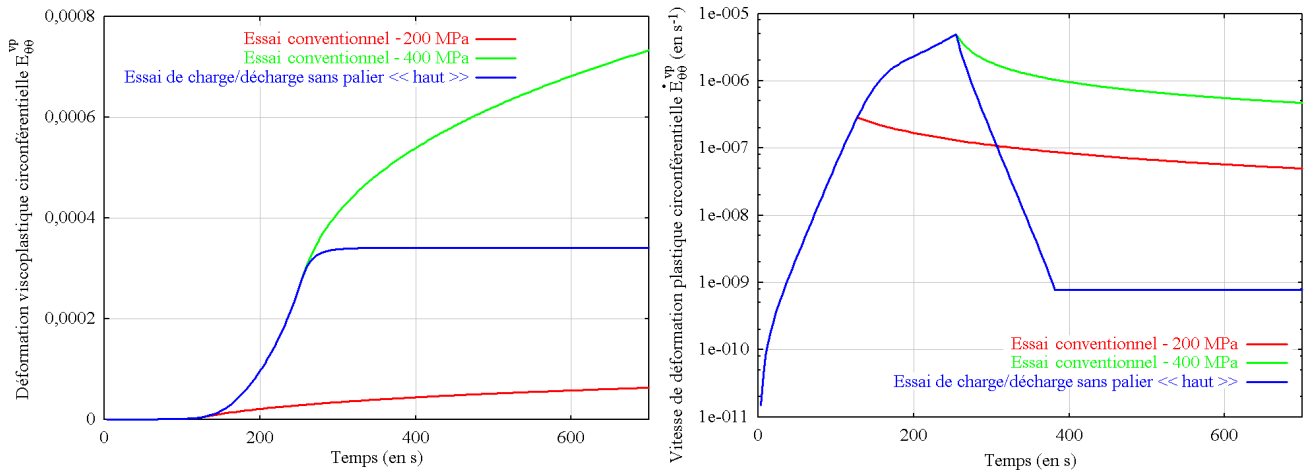


FIG. VI-5. Évolution de la déformation viscoplastique circconférentielle  $E_{\theta\theta}^{vp}$  et de la vitesse de déformation viscoplastique circconférentielle  $\dot{E}_{\theta\theta}^{vp}$  au cours d'un essai de « charge/décharge » par comparaison avec des essais « conventionnels ». Résultats de simulations. Zircaloy-4 détendu irradié deux cycles à 350 °C.

Comme nous pouvons le constater, le palier « haut » a un effet très marqué sur la vitesse de déformation viscoplastique qui chute fortement suite à la diminution de pression interne. En termes de temps à rupture, nous pouvons donc nous attendre à une durée de vie plus importante des essais de charge/décharge en comparaison des essais conventionnels, si nous supposons que la vitesse de déformation viscoplastique est le paramètre mécanique d'ordre un pour décrire le

processus de fissuration par CSC (partie A de ce mémoire). Il est important de noter que cet effet est encore plus important en pointe de fissure, lorsque nous modélisons cette dernière (la vitesse de déformation viscoplastique pouvant même devenir négative lorsque la profondeur du défaut est importante). Par contre, s'il s'agit de la contrainte mécanique ou de la déformation viscoplastique, la durée de vie des essais de « charge/décharge » attendue serait encadrée par celles des essais « conventionnels ».

## 2.3 PRÉSENTATION DES RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX

Dans ce paragraphe, nous allons successivement exposer les données expérimentales disponibles issues, d'une part, des campagnes d'essais conventionnels et, d'autre part, des essais de charge/décharge réalisés pour étudier la sensibilité à la corrosion sous contrainte du Zircaloy-4 à l'état détendu et cela pour différents niveaux d'irradiation.

### 2.3.1 Sensibilité à la corrosion sous contrainte du Zircaloy-4 détendu et son évolution avec l'irradiation

Dans un premier temps, il est important de déterminer les courbes de durée de vie (évolution du temps à rupture en fonction de la contrainte circonférentielle  $\Sigma_{\theta\theta}$ ) à l'aide d'essais conventionnels, essais qui nous ont servi de référence pour construire notre programme expérimental d'essais de charge/décharge.

Par souci de clarté, nous avons regroupé sous forme de tableaux, dans l'annexe VI-A, les données expérimentales suivantes :

- Travaux réalisés par Rouillon *et al.* [1997] au CEA Grenoble sur Zircaloy-4 détendu non irradié. Le matériau de cette étude sera désigné par le terme « lot A » dans la suite.
- Les essais conventionnels sur des tubes en Zircaloy-4 détendu provenant de crayons combustibles irradiés durant un cycle de fonctionnement d'un réacteur REP ont été réalisés dans le cadre d'un programme commun EDF-CEA-Framatome.
- Les résultats des essais précédents nous ont servi de référence pour élaborer et optimiser notre programme expérimental d'étude de la CSC du Zircaloy-4 détendu irradié durant deux cycles en réacteur de puissance.

Le tableau VI-1 dresse un bilan des essais conventionnels réalisés à 350 °C afin d'étudier la sensibilité à la CSC du Zircaloy-4 détendu en fonction de l'irradiation.

TABLEAU VI-1. Bilan de la base d'essais conventionnels pour étudier la sensibilité à 350 °C du Zircaloy-4 détendu pour différents niveaux d'irradiation.

Zircaloy-4 état métallurgique détendu	Nombre d'essais conventionnels		Limite d'élasticité $\Sigma_{el\ 0,2\ \%}$ (en MPa)	Observations
	en milieu inerte	de CSC (iode)		
Non irradié	7	14	440	[Rouillon et al. 1997]
Irradié un cycle REP	5	9	640	[Rouillon 1999]
Irradié deux cycles REP	1	9	660	14 tronçons disponibles

Rappelons que les tubes en alliages irradiés proviennent de crayons combustibles qui ont séjourné en réacteur<sup>5</sup>. Localement, la gaine et la surface interne de celle-ci peuvent alors

<sup>5</sup> Ces tronçons sont donc hydrurés et corrodés et ont subi un chargement thermomécanique, pouvant différer suivant la position du tronçon découpé (le champ de température et l'épaisseur de la zircone, liée à la corrosion, varient le long d'un crayon en réacteur). De plus, dans le cas des tubes irradiés deux cycles, les gaines ont été en contact avec les pastilles (IPG), engendrant localement des zones de forts gradients des champs mécaniques (voir chapitre I).

présenter des défauts plus ou moins sensibles à la CSC. De plus, lors de la préparation des tronçons, des défauts supplémentaires peuvent éventuellement être créés<sup>6</sup>. Ceci peut en partie expliquer la dispersion importante des durées de vie observée sur alliages irradiés.

La figure VI-6 nous montre que le comportement en fluage (du tube) n'est pas sensiblement modifié par la présence d'iode. Nous retrouvons bien que le Zircaloy-4 détendu est un matériau sensible à la vitesse de déformation et cette sensibilité augmente avec l'irradiation (cf. chapitre V). Cependant, nous ne disposons pas à l'heure actuelle des métrologies réalisées après essais sur matériau irradié deux cycles, mais nous pouvons estimer que la sensibilité du matériau à la vitesse n'évoluera que très peu entre un et deux cycles d'irradiation. Il est important de noter qu'il est très difficile de mesurer des variations de diamètre de quelques micromètres sur matériaux irradiés (même par métrologie Laser), ce qui implique des incertitudes importantes sur la détermination expérimentale de la vitesse de déformation circonférentielle moyenne.

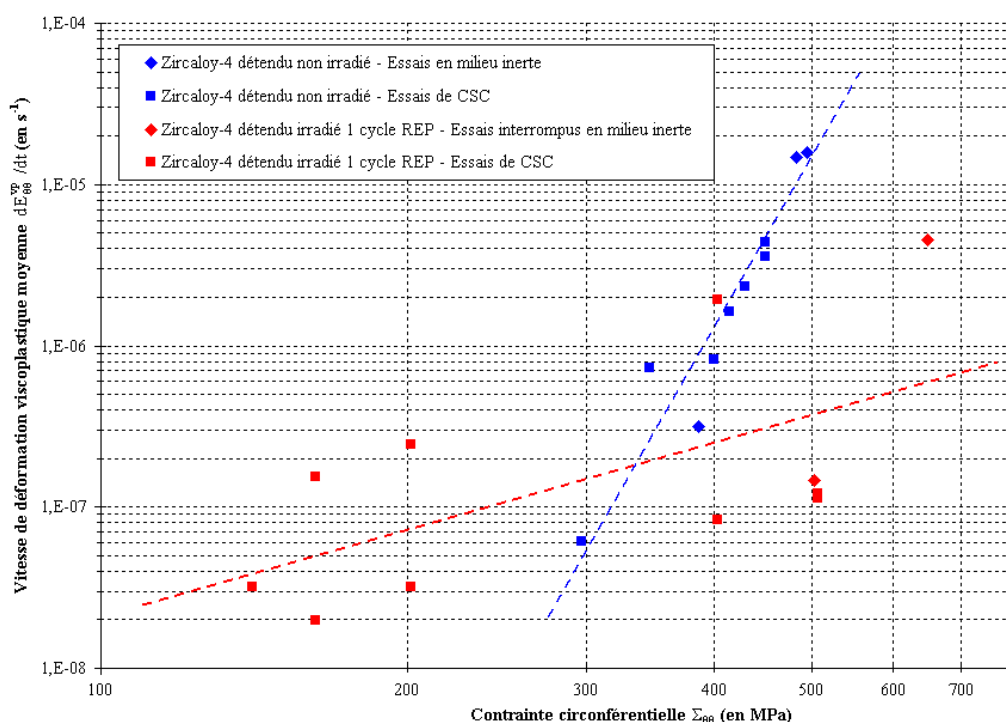


FIG. VI-6. Comportement en fluage du Zircaloy-4 détendu à 350 °C en fonction de l'irradiation.  
Essais conventionnels en milieux inerte et corrosif.

Il est possible de synthétiser les résultats obtenus dans un même diagramme en définissant une « contrainte normalisée » comme étant le rapport de la contrainte circonférentielle  $\Sigma_{\theta\theta}$ , imposée lors de l'essai conventionnel, et la limite d'élasticité conventionnelle  $\Sigma_{el\ 0,2\ \%}$  en traction circonférentielle (dont les valeurs sont disponibles au tableau VI-1).

Dans ce diagramme présenté à la figure VI-7, il est intéressant de constater que :

- Le comportement en fluage (en milieu inerte), ainsi normalisé, est identique quel que soit le niveau d'irradiation.
- La sensibilité à la corrosion sous contrainte évolue fortement entre l'état non irradié et un cycle d'irradiation. Par contre, aucun changement n'est notable entre un et deux cycles d'irradiation, ce qui peut être corrélé aux caractéristiques mécaniques du matériau, qui n'évoluent que très peu au-delà du premier cycle d'irradiation en REP.

<sup>6</sup> Le combustible est extrait de la gaine par dépastillage chimique (lorsqu'il y a eu IPG) ou par déburrage mécanique (pour les crayons irradiés jusqu'à environ un cycle), ce qui peut alors engendrer des rayures de la surface interne. Les tronçons pour essais mécaniques sont ensuite découpés.



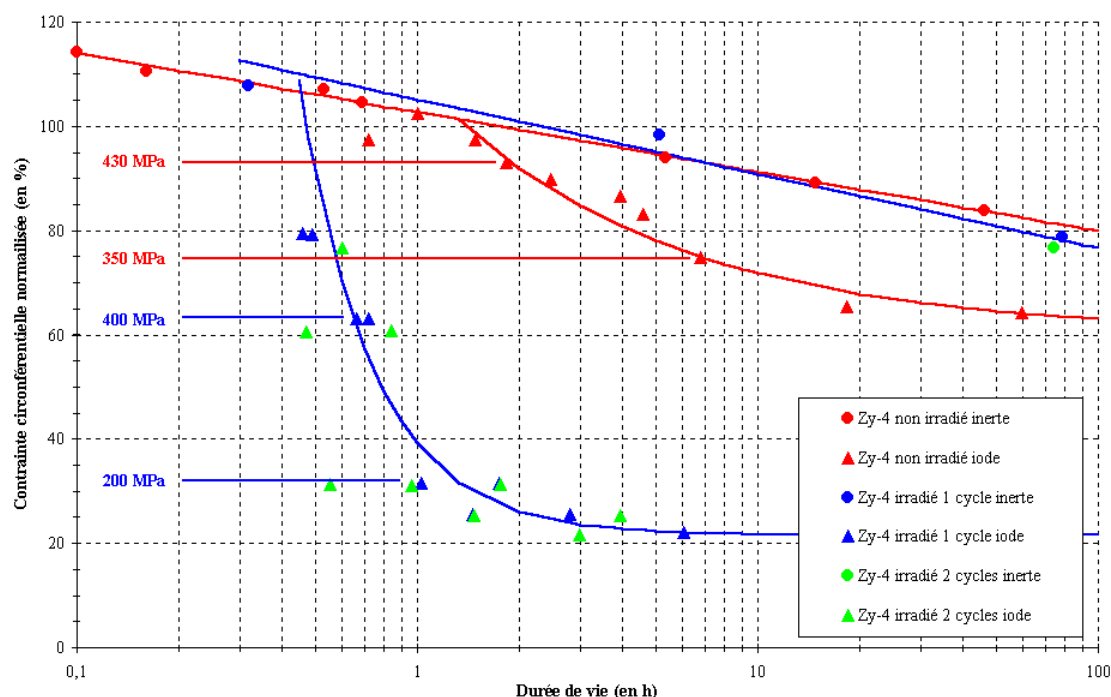


FIG. VI-7. Sensibilité à la corrosion sous contrainte du Zircaloy-4 à l'état métallurgique détendu à 350 °C en fonction de l'irradiation.

Les résultats présentés nous ont alors permis de définir notre programme d'essais de CSC de charge/décharge. Les contraintes retenues sont les suivantes, la durée du palier « haut »  $T$  étant nulle :

- Pour les essais sur Zircaloy-4 non irradié,  $\Sigma_H = 430$  MPa et  $\Sigma_B = 350$  MPa.
- Les tubes issus de crayons combustibles irradiés deux cycles en REP seront soumis à  $\Sigma_H = 400$  MPa et  $\Sigma_B = 200$  MPa.

Ces contraintes ont été choisies afin d'éviter des durées de vie et une dispersion trop importantes, surtout pour les faibles contraintes (inférieures à 310 MPa pour l'alliage non irradié et 190 MPa sur l'alliage irradié un ou deux cycles REP). Les durées de vie des essais conventionnels pour les contraintes « basse » et « haute » doivent être « suffisamment » différentes pour mettre en évidence un éventuel effet du palier haut.

### 2.3.2 Essais de CSC de « charge/décharge »

La réalisation des essais de charge/décharge n'implique pas de modification de notre dispositif expérimental. Les variations régulées de la pression interne se font donc par apport ou évacuation du gaz présent dans le tube. Mais cela entraîne une perte d'iode suite à la dépressurisation du tube lors de l'essai de charge/décharge. Il est donc important de vérifier, en premier lieu, qu'il restera alors suffisamment d'iode dans le tube pour conduire à la rupture par CSC de ce dernier.

#### *Influence de la concentration initiale en iode*

Nous avons réalisé une campagne d'essais conventionnels sur matériau non irradié à la contrainte circonférentielle de 350 MPa, ce qui correspond à la contrainte « basse » de l'essai de charge/décharge tel que nous l'avons défini. Pour simuler la perte en iode, nous avons étudié l'influence de la concentration initiale en iode sur le temps à rupture. Nous avons retenu les trois valeurs suivantes : 30, 75 et 120 mg d'iode introduits en début d'essai. Rappelons que la masse

« couramment » utilisée est de 75 mg, ce qui conduit à une concentration surfacique<sup>7</sup> de  $10,1 \text{ mg.cm}^{-2}$ . Par comparaison avec les valeurs seuils de la littérature (voir tableau III-1), nous estimons toujours être dans des conditions favorables à la CSC du point de vue chimique<sup>8</sup>.

Tous les résultats expérimentaux sont reportés en annexe VI-B et sont synthétisés dans le tableau VI-2 ci-dessous. Notons que ces essais ont été réalisés sur une coulée (référéncée par la suite « lot B ») différente de celle utilisée (« lot A ») pour réaliser les essais « conventionnels » du paragraphe 2.3.1. Le comportement en fluage de ces tubes du « lot B » est identique à celui obtenu précédemment pour le « lot A ». Par contre, les temps à rupture en CSC pour le « lot B » sont inférieurs à ceux que nous avons obtenus pour le « lot A ».

Suite à cette étude, nous constatons qu'il n'y a pas d'influence significative de la concentration en iode dans le domaine que nous avons étudié. Nous en déduisons alors que la perte en iode lors des essais de charge/décharge ne sera pas la cause des différences éventuelles sur les temps à rupture entre les essais de charge/décharge et les essais conventionnels que nous allons maintenant exposer.

TABLEAU VI-2. Synthèse des résultats expérimentaux sur l'étude de l'influence de la concentration initiale en iode sur la CSC du Zircaloy-4 détendu non irradié à 350 °C (« lot B »). Essais conventionnels à la contrainte circonférentielle de 350 MPa.

Masse initiale d'iode introduite (en mg)	$\Sigma_{\theta\theta}$ (en MPa)	Temps à rupture $t_R$ (en h)	Déformation $E_{\theta\theta}^{vp}$	Vitesse moyenne $\dot{E}_{\theta\theta}^{vp}$ (en $s^{-1}$ )	Nombre d'essais réalisés
30	350	$4,6 \pm 0,5$	$0,0034 \pm 0,0004$	$(2,1 \pm 0,2) \cdot 10^{-7}$	4
75	350	$4,0 \pm 1,1$	$0,0031 \pm 0,0006$	$(2,4 \pm 0,5) \cdot 10^{-7}$	5
120	350	$3,7 \pm 0,7$	$0,0035 \pm 0,0005$	$(2,6 \pm 0,2) \cdot 10^{-7}$	4

#### Essais de charge/décharge sur Zircaloy-4 détendu non irradié – Influence du « palier haut »

Faisons tout d'abord une remarque préliminaire importante. Les premiers essais de charge/décharge ont été réalisés sur la coulée « lot B », mais, par manque de matière, nous avons dû poursuivre notre programme d'essais de charge/décharge sur une autre coulée, dénommée « lot C ». Suite aux résultats que nous avons obtenus (reportés ci-dessous), il nous est apparu comme nécessaire d'inclure, dans les travaux futurs, une caractérisation systématique de chaque nouveau lot étudié (détermination de la sensibilité à la CSC par des essais « conventionnels »), afin de pouvoir comparer les données obtenues et la base expérimentale existante, et notamment pour les comparaisons entre essais conventionnels et de charge/décharge.

Le tableau VI-3 synthétise la campagne d'essais de charge/décharge réalisés sur les deux lots « B » et « C » en comparaison des essais conventionnels. Toutes les données expérimentales ont été regroupées dans l'annexe VI-B. Nous n'avons pas reporté la vitesse moyenne de déformation viscoplastique, puisque celle-ci ne peut être définie pour les essais de charge/décharge, contrairement aux essais conventionnels où elle correspondait généralement à la vitesse de fluage secondaire.

<sup>7</sup> Cette unité de concentration correspond au rapport de la masse de produit corrosif introduit sur la surface de l'éprouvette susceptible d'être attaquée (surface interne du tube en alliage de zirconium). Elle est très usitée dans les études de CSC des alliages de zirconium, mais il faudrait plutôt parler en terme d'activité chimique.

<sup>8</sup> De plus, la couleur brune (plus ou moins marquée) lors du rinçage de l'éprouvette et du creuset à la fin de l'essai atteste qu'il reste encore de l'iode disponible.

TABLEAU VI-3. Campagne d'essais de CSC conventionnels et de charge/décharge sur Zircaloy-4 détendu à 350 °C avec une masse initiale d'iode de 75 mg – Influence de la durée du palier haut et du lot étudié.

<i>Essais conventionnels</i>					
<i>Lot étudié</i>	$\Sigma_{\theta\theta}$ (en MPa)	<i>Temps à rupture</i> $t_R$ (en h)	<i>Déformation</i> $E_{\theta\theta}^{vp}$	<i>Vitesse moyenne</i> $\dot{E}_{\theta\theta}^{vp}$ (en s <sup>-1</sup> )	<i>Nombre d'essais réalisés</i>
« B »	350	4,0 ± 1,1	0,0033 ± 0,0005	(2,4 ± 0,4).10 <sup>-7</sup>	4+5+4
	430	1,8	0,0110	1,7.10 <sup>-6</sup>	1
« C »	350	6,3 ± 0,5	0,0052 ± 0,0003	(2,3 ± 0,1).10 <sup>-7</sup>	4
	430	2,7	0,0117	1,2.10 <sup>-6</sup>	1

<i>Essais de charge/décharge <math>\Sigma_H = 430</math> MPa et <math>\Sigma_B = 350</math> MPa</i>				
<i>Lot étudié</i>	<i>Durée du palier « haut » (en min)</i>	<i>Temps à rupture</i> $t_R$ (en h)	<i>Déformation</i> $E_{\theta\theta}^{vp}$	<i>Nombre d'essais réalisés</i>
« B »	0	4,5 ± 0,3	0,0038 ± 0,0003	3
	20	4,3 ± 0,2	0,0055 ± 0,0005	2
	60	3,9 ± 0,1	0,0080 ± 0,0003	2
« C »	60	5,3 ± 0,8	0,0086 ± 0,0005	5

Le comportement en fluage des tubes issus de ces deux lots est identique<sup>9</sup> ; pour les essais conventionnels, ils sont de plus identiques au comportement de référence du lot « A ». Par contre, nous notons que les temps à rupture obtenus lors des essais conventionnels de CSC pour les lots « B » et « C » sont différents, ce qui justifie notre remarque préliminaire<sup>10</sup>.

Analysons maintenant les résultats des essais de charge/décharge.

Comme attendu, la déformation viscoplastique augmente avec la durée du palier haut.

Le fait le plus marquant et surprenant est que, quel que soit le lot utilisé, les temps à rupture des essais de charge/décharge, en tenant compte de la dispersion des résultats, sont indépendants de la durée du palier haut et identiques aux temps à rupture obtenus pour les essais conventionnels pour la contrainte « basse ». Il semble donc qu'il n'y ait pas d'effet de la surcharge mécanique sur la corrosion sous contrainte des tubes en Zircaloy-4 détendu. De plus, il n'est pas possible de corrélérer les temps à rupture obtenus avec la déformation viscoplastique macroscopique, ce qui semble exclure ce paramètre mécanique de la liste des paramètres susceptibles de gouverner le processus de fissuration par CSC. Toutefois, il est nécessaire de disposer d'informations supplémentaires avant de conclure sur le rôle des divers paramètres mécaniques.

#### *Essais de charge/décharge sur Zircaloy-4 détendu irradié deux cycles REP*

Parallèlement aux premiers essais de charge/décharge réalisés sans palier haut, nous avons pu également conduire deux essais de charge/décharge sur alliage irradié deux cycles. Rappelons que les conditions de chargement retenues sont  $\Sigma_H = 400$  MPa,  $\Sigma_B = 200$  MPa sans palier haut.

<sup>9</sup> Nous avons pour cela tracé l'évolution de la déformation viscoplastique circonférentielle mesurée en fonction du temps à rupture pour les différents trajets de chargement et lots.

<sup>10</sup> À notre connaissance, les deux lots ont subi la même gamme de fabrication, mais seule la concentration massique en oxygène est légèrement différente (1250 ppm pour le lot « B », 1350 ppm pour le lot « C »). L'effet durcissant de l'oxygène est peut être à l'origine des temps à rupture différents ; cet effet serait local car les comportements en fluage des tubes sont très proches.

Le tableau VI-4 regroupe les résultats expérimentaux.

TABLEAU VI-4. Essais de CSC conventionnels et de charge/décharge sur Zircaloy-4 détendu irradié deux cycles REP à 350 °C avec une masse initiale d'iode de 75 mg.

<i>Zircaloy-4 détendu irradié deux cycles REP</i> <i>Essais réalisés pour T = 350 °C</i>	<i>Temps à rupture</i> <i>t<sub>R</sub> (en h)</i>
Essais conventionnels ( $\Sigma = 200$ MPa)	0,96 - 1,75 - 0,55
Essais de charge/décharge $\Sigma_H = 400$ MPa, $\Sigma_B = 200$ MPa, sans palier haut	1,42 - 1,26
Essais conventionnels ( $\Sigma = 400$ MPa)	0,84 - 0,47

Comme observé sur le Zircaloy-4 détendu non irradié, il n'y a pas d'effet significatif de la surcharge mécanique qui est pourtant plus importante sur matériau irradié que sur alliage non irradié (écarts respectifs de 200 et 70 MPa entre les contraintes « haute » et « basse »). Nous nous étions attendus à des effets plus marqués du trajet de chargement pour le matériau irradié.

### 2.3.3 Observation des faciès de rupture

Afin de compléter les analyses débutées au paragraphe précédent, l'observation des faciès de rupture, notamment de l'étendue des zones de propagation intergranulaire et transgranulaire, a été effectuée pour les différents chargements étudiés. Précisons que la microstructure du Zircaloy-4 à l'état détendu, décrite au chapitre V, ne permet pas toujours de distinguer nettement les zones intergranulaire et transgranulaire, surtout lorsque celles-ci sont légèrement oxydées, voire corrodées par l'iode, suite à la rupture du tube.

#### *Faciès de rupture obtenus lors d'essais conventionnels sur alliages non irradiés*

Pour le Zircaloy-4 détendu non irradié (« lot A »), les données issues des observations en microscopie électronique à balayage (MEB) proviennent des travaux de Bossis [1996], réalisés au CEA Grenoble. Le tableau VI-5 regroupe les données tirées des observations MEB des essais conventionnels de CSC conduits sur le Zircaloy-4 irradié un cycle REP. Des contraintes techniques, liées à la lourdeur des manipulations d'éprouvettes irradiées, n'ont pas pu permettre, dans le temps imparti de nos travaux, la découpe et la préparation d'échantillons pour l'observation des faciès de rupture obtenus lors des essais de CSC (conventionnels et de charge/décharge) réalisés sur Zircaloy-4 irradié deux cycles.

Il est possible de synthétiser les observations que nous venons de présenter (fig. VI-8) ; nous avons également reporté des observations réalisées sur d'autres alliages de zirconium à l'état recristallisé. Ce diagramme représente la taille de la zone intergranulaire  $a_{int}$  des fissures de CSC en fonction de la vitesse de déformation viscoplastique  $\dot{E}_{\theta\theta}^{vp}$  moyenne. Il est remarquable de constater que, pour tous les alliages de zirconium, la loi donnant  $a_{int}$  fonction de  $\dot{E}_{\theta\theta}^{vp}$  est identique, ce que l'on ne retrouve pas lorsque l'on trace les évolutions de  $a_{int}$  avec  $\Sigma_{\theta\theta}$  ou  $E_{\theta\theta}^{vp}$ .

#### *Comparaison des faciès entre les essais conventionnels et de charge/décharge*

Afin d'éclairer les résultats obtenus au paragraphe 2.3.2, des observations au MEB des faciès de rupture obtenus pour les lots « B » et « C » ont été réalisées et nous en avons reporté les principaux résultats dans le tableau VI-6.

TABLEAU VI-5. Observation des faciès obtenus lors des essais de CSC sur Zircaloy-4 détendu irradié un cycle REP.

Essai	Description des faciès observés (fissure débouchante)	Profondeur de la fissure de CSC $a_{CSC}$ (en $\mu m$ )	Extension axiale de la fissure $2b$ (en $\mu m$ )	Profondeur intergranulaire $a_{int}$ (en $\mu m$ )
$1c\_6$	QC + F	210	$\infty$	50
$1c\_7$	Faciès de rupture non observés			
$1c\_8$	QC + F	240	$\infty$	105
$1c\_9$	Faciès de rupture non observés			
$1c\_10$	QC + P	260	1110	70
$1c\_11$	QC + P *	190 *	1000 *	50 *
$1c\_12$	QC+P (coalescence de fissures)	560	3330	60
$1c\_13$	Faciès très oxydés	580	3330	Non mesurable
$1c\_14$	QC + F	580	5840	135

QC + F : Présence de quasi-clivage et de « flutings » sur les faciès de CSC.

QC + P : Présence de quasi-clivage et de traces de plasticité (émergence de bandes de glissement sur quelques joints de grains pour la phase intergranulaire)

$\infty$  : Extension axiale très importante (n'ayant pu être évaluée).

\* : La fissure observée n'est peut-être pas le défaut débouchant.

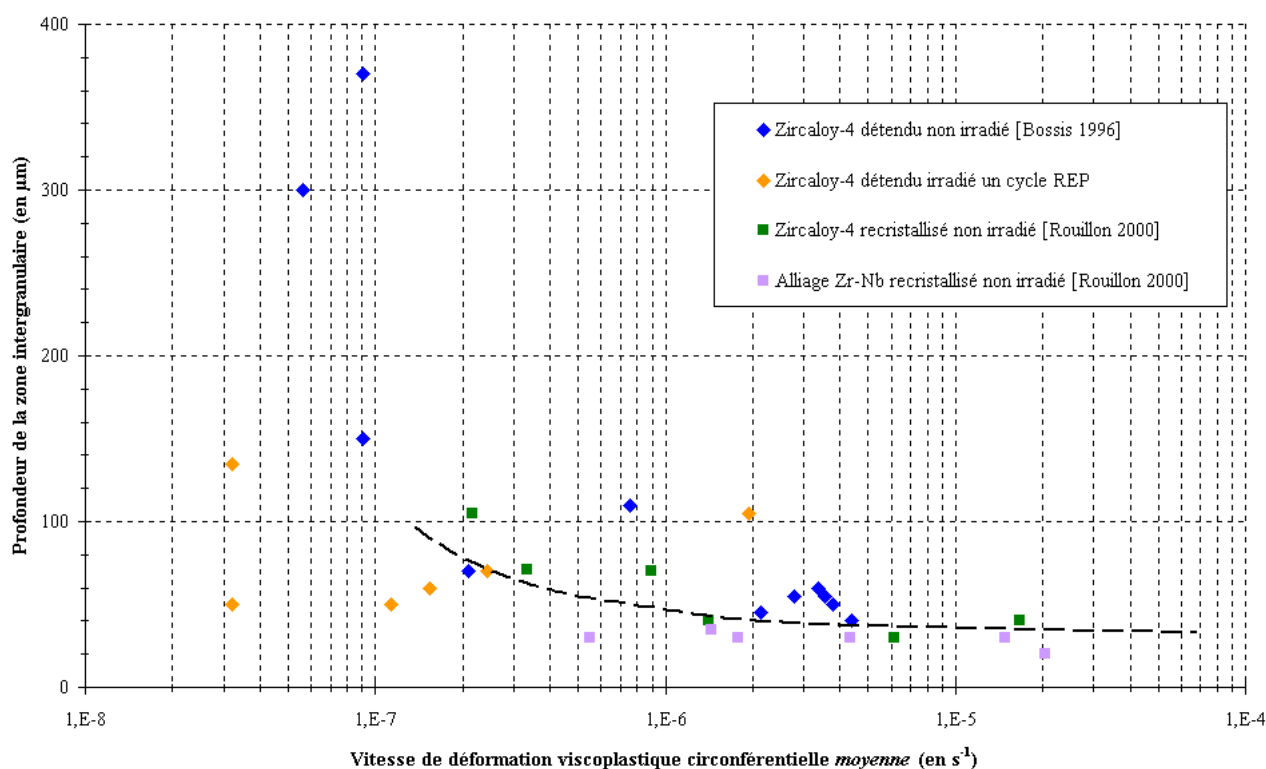


FIG. VI-8. Taille des fissures de CSC en fonction de la déformation viscoplastique circonférentielle  $\dot{E}_{\theta\theta}^{vp}$  moyenne (évaluée lors des essais) pour différents alliages de zirconium.

Les résultats obtenus pour le lot « B » laissent à penser que la dimension de la zone intergranulaire augmente avec la durée du palier haut lors des essais de charge/décharge. On peut alors estimer que les temps à rupture très proches obtenus seraient le résultat d'effets opposés : un défaut de CSC se propagerait plus rapidement durant le palier haut puis plus lentement suite

à la décharge au cours d'un essai de charge/décharge en comparaison avec le cas d'une fissure de CSC lors d'un essai conventionnel (à la contrainte « basse »). Toutefois, les dimensions de la zone intergranulaire sont peut-être fortement surestimées à cause de l'oxydation importante des faciès, comme le suggèrent les observations sur le lot « C ».

TABLEAU VI-6. Observations des faciès de rupture obtenus lors d'essais conventionnels et essais de charge/décharge réalisés sur les lots « B » et « C » à 350 °C.

<i>Lot étudié</i>	<i>Essai</i>	<i>Profondeur intergranulaire <math>a_{int}</math> (en <math>\mu m</math>)</i>	<i>Extension axiale de la fissure <math>2b</math> (en <math>\mu m</math>)</i>	<i>Remarques</i>
« B »	<i>Essais conventionnels <math>\Sigma_{\theta\theta} = 350</math> MPa</i>			
	<i>B_0c_1</i>	60	Nm	-
	<i>B_0c_5</i>	60	2600	Faciès légèrement oxydés
	<i>B_0c_12</i>	50	Nm	Faciès légèrement oxydés
	<i>Essais de charge/décharge <math>\Sigma_H = 430</math> MPa et <math>\Sigma_B = 350</math> MPa</i>			
	<i>B_0c_D1</i> palier 0 min	130 ?	2550	Faciès oxydés
	<i>B_0c_D4</i> palier 20 min	150 ?	2650	Faciès oxydés
	<i>B_0c_D6</i> palier 60 min	150 - 200 ?	2410	Faciès très oxydés
	<i>B_0c_D7</i> palier 60 min	170 - 200 ?	2400	Faciès oxydés
« C »	<i>Essais conventionnels <math>\Sigma_{\theta\theta} = 350</math> MPa</i>			
	<i>C_0c_3</i>	30 - 40	Nm	-
	<i>Essais de charge/décharge <math>\Sigma_H = 430</math> MPa et <math>\Sigma_B = 350</math> MPa</i>			
	<i>B_0c_D3</i> palier 60 min	30	Nm	-

Nm : Extension axiale du défaut non mesurée.

? : L'oxydation du défaut débouchant empêche d'évaluer correctement sa profondeur intergranulaire.

La figure VI-9a montre un exemple de faciès de rupture oxydés par l'atmosphère externe suite à la rupture du tube. Comme nous pouvons le voir, il est très difficile, dans ce cas, d'estimer correctement la taille de la zone intergranulaire. De plus, la microstructure particulière de l'alliage étudié ne permet pas toujours de bien cerner la transition entre les étapes intergranulaire et transgranulaire, représentées aux figures VI-9b et VI-9c, même sans oxydation des faciès.

## 2.4 SYNTHÈSE DES RÉSULTATS

Au cours de ce paragraphe, nous avons présenté les résultats de notre première campagne d'essais. Afin d'étudier la corrosion sous contrainte des alliages de zirconium, nous avons développé puis expérimenté un nouvel essai de CSC, essai dit de « charge/décharge », dont le but est de faire varier les paramètres mécaniques macroscopiques mais aussi microscopiques pour tenter de modifier la propagation des défauts de CSC. Les résultats obtenus montrent qu'il ne semble pas y avoir d'effet de la surcharge mécanique sur les temps à rupture, mais que cette surcharge influencerait sur la propagation notamment intergranulaire d'un défaut de CSC. Ce dernier point est à confirmer impérativement. Cependant, nos analyses mécaniques se placent à un niveau macroscopique et il apparaît nécessaire d'étudier l'influence du chargement macroscopique imposé sur les paramètres mécaniques locaux en pointe de fissure. Ceci fait l'objet du prochain paragraphe.

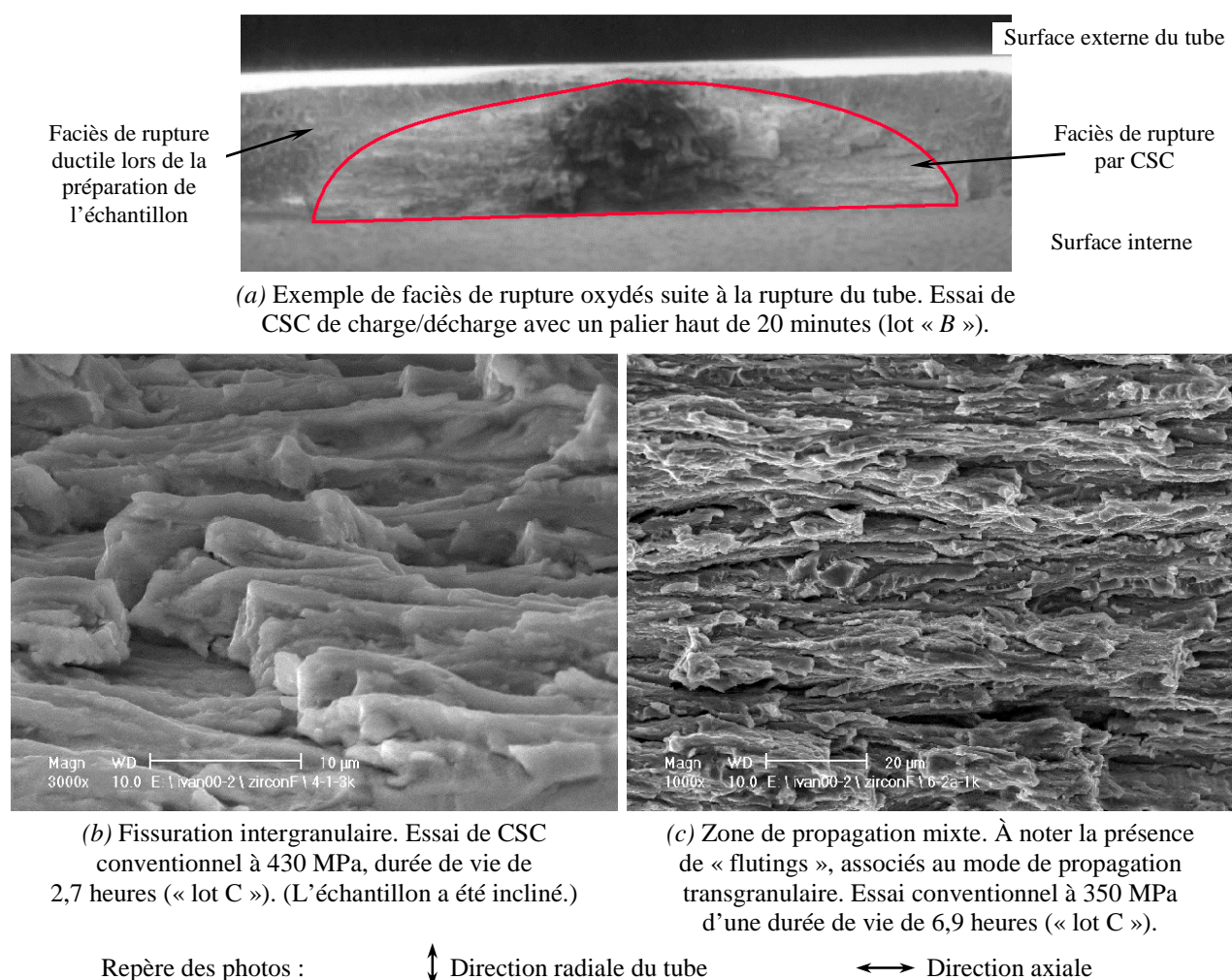


FIG. VI-9. Quelques observations au MEB de faciès de rupture par CSC, typiques de ceux obtenus lors d'essais de pressurisation interne sur Zircaloy-4 détendu à 350 °C.

### 3 MODÉLISATION ET INTERPRÉTATION DES ESSAIS DE CSC

Pour poursuivre l'étude expérimentale entreprise, nous avons développé en parallèle une modélisation par éléments finis<sup>11</sup> des essais de pressurisation interne. L'objectif de ces calculs est, d'une part, d'estimer les champs mécaniques locaux, notamment en pointe de fissure, informations qui ne sont pas accessibles expérimentalement, et, d'autre part, d'aider à la définition de nouveaux essais de corrosion sous contrainte afin d'étudier l'influence des paramètres mécaniques sur le processus de fissuration par corrosion sous contrainte des alliages de zirconium.

#### 3.1 MISE EN ŒUVRE DES CALCULS

Tous les calculs que nous avons effectués ont été réalisés sur la géométrie des tubes sollicités en pressurisation interne, telle que nous l'avons décrite au paragraphe 2. Seuls diffèrent d'un calcul à l'autre, les sollicitations mécaniques imposées (pression interne et vitesse de propagation en CSC différentes) et le comportement mécanique du matériau (effet de l'irradiation).

<sup>11</sup> Les calculs ont été réalisés à l'aide du code de calculs par éléments finis ABAQUS<sup>TM</sup> version 5.8.

### 3.1.1 Hypothèses associées à notre modélisation

Afin de mener à bien nos calculs, nous avons fait les hypothèses suivantes.

- La présence et la propagation d'une fissure unique sont décrites.
- Compte tenu de la géométrie des fissures de CSC observées au MEB, pour lesquelles le rapport de l'extension axiale de la fissure sur sa profondeur est proche de 10, nous considérons que la fissure est infinie selon l'axe du tube. La longueur du tube étant importante et sa déformation uniforme sur presque toute sa longueur, nous le supposons également infini. Cela permet de ramener notre problème tridimensionnel complexe à un problème bidimensionnel en ne modélisant qu'une section fissurée du tube. Notons que, pour les petites profondeurs de fissure, l'hypothèse d'une extension axiale infinie est une condition mécanique sévère par rapport à la réalité du problème.
- Cependant, afin de tenir compte de l'effet de fond et de la triaxialité des contraintes, notamment en pointe de fissure, l'hypothèse des déformations planes généralisées (DPG) a été retenue, ainsi que l'hypothèse des petites déformations.
- La température est supposée constante ( $T = 350\text{ °C}$ ).
- L'élastoviscoplasticité du matériau est prise en compte dans les calculs, par l'utilisation des modèles de comportement que nous avons identifiés au chapitre V et intégrés au code de calcul par éléments finis.
- Les calculs se font dans le cadre de la mécanique des milieux continus à l'échelle du VER, ce qui peut rendre l'interprétation des résultats parfois difficile lorsque les champs mécaniques sont très localisés en pointe de fissure.
- Nous ne modélisons pas les effets d'environnement. En effet, nous supposons que l'iode est toujours présent en quantité suffisante pour engendrer la corrosion sous contrainte et que le comportement mécanique du matériau n'est pas modifié par l'environnement. Cette dernière hypothèse est en relation avec le mécanisme d'adsorption de l'iode sur la surface du métal mis à nu et sans diffusion de l'iode dans le métal (voir partie A).

### 3.1.2 Description du maillage - Conditions aux limites

Les conditions aux limites, intégrant la symétrie de notre problème bidimensionnel, sont présentées à la figure VI-10 a. La génératrice A est encastree afin de bloquer les modes rigides de la structure. La fissure se propage le long du plan de symétrie (CD), la pointe de fissure  $P_f$  se déplaçant du point C vers le point D et le segment  $[CP_f]$  représentant la lèvre de la fissure.

Rappelons que l'hypothèse des déformations planes généralisées postule l'uniformité de la déformation axiale  $E_{zz}$  en tout point de la structure, valeur *a priori* non nulle ; la contrainte axiale  $\Sigma_{zz}$  est, quant à elle, variable. Nous avons également supposé que la section modélisée restait plane et perpendiculaire à l'axe du tube (blocage des degrés de liberté associés à la rotation de ce plan). Le chargement est imposé par l'application de la pression interne  $p(t)$  et de la force  $F(t)$  correspondant à l'effet de fond,  $F(t) = p(t) \pi R_i^2$ , force rapportée à la surface du tube modélisé.

Le maillage que nous avons retenu comporte 3033 nœuds pour 2752 éléments quadrangulaires, bidimensionnels, linéaires, à quatre points d'intégration (fig. VI-10 b). Le maillage présente un raffinement important dans la zone de propagation de la fissure. À titre indicatif, la taille des éléments dans cette zone (voir zoom sur la figure VI-10 b) est d'environ  $2\text{ }\mu\text{m}$ , ce qui correspond à la dimension des grains de notre matériau dans cette direction. Ce raffinement est indispensable si nous souhaitons obtenir des résultats numériques corrects des champs mécaniques au voisinage de la pointe de la fissure, même si, à cette échelle, nous ne sommes plus rigoureusement dans le cadre de la MMC avec une loi de comportement macroscopique (l'aspect cristallin de la plasticité est à décrire à cette échelle). La propagation de la fissure est modélisée à l'aide de la méthode de relâchement des nœuds, intégrée au code de calcul.



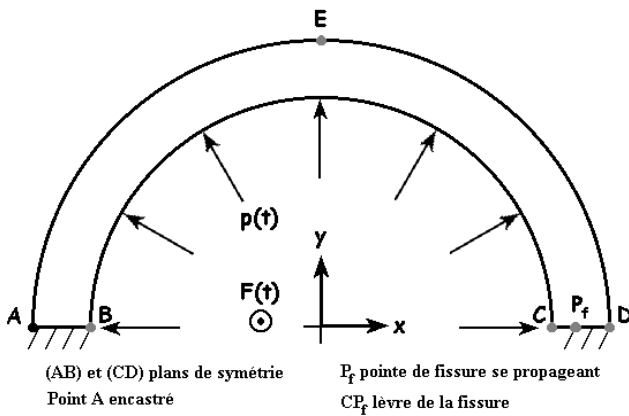


FIG. VI-10 A. Conditions aux limites de notre modélisation par éléments finis des essais de CSC.

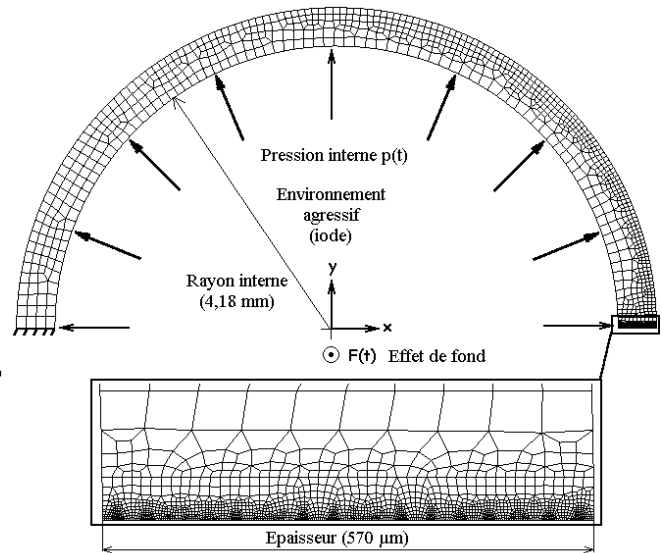


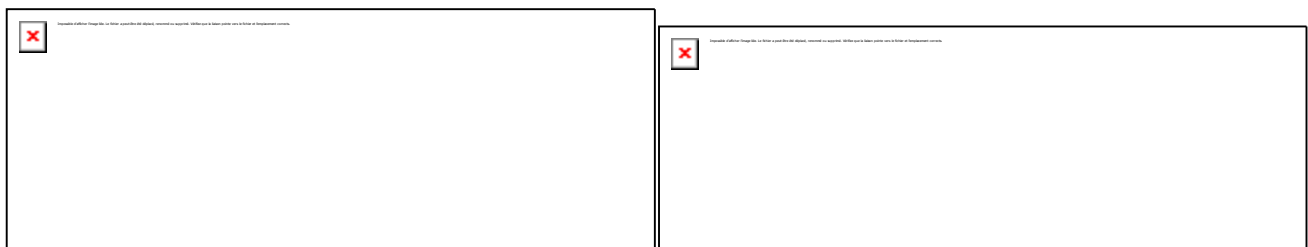
FIG. VI-10 B. Maillage retenu pour les simulations.

Notons enfin que les déplacements des points remarquables de la géométrie permettent d'accéder à des grandeurs mesurables expérimentalement :

- variation du diamètre extérieur et de l'épaisseur du tube « loin » de la fissure (en E et B),
- variation du diamètre extérieur et de l'épaisseur du tube au niveau de la fissure (en C et D),
- ovalisation du tube liée à la présence de la fissure (en D et E),
- ouverture de la fissure en surface interne du tube (en C).

### 3.1.3 Modèle non fissuré

Le modèle que nous venons de présenter est surtout utilisé pour décrire des trajets de chargement complexes sur des tubes présentant une fissure. Afin d'étudier les conditions d'amorçage de ces fissures (problème que nous aborderons au cours du prochain chapitre), nous utilisons un modèle plus simple et beaucoup moins lourd à gérer. Dans le cas d'un tube « sain », nous ne modélisons qu'une portion angulaire ( $2^\circ$ ) d'une section du tube, afin de décrire l'hétérogénéité des champs mécaniques régnant dans l'épaisseur du tube. La figure VI-11 présente les conditions aux limites ainsi que le maillage utilisés.



(a) Conditions aux limites. (b) Maillage bidimensionnel.  
FIG. VI-11. Définition du modèle non fissuré. Calculs sur tubes « sains » (non fissurés).

## 3.2 SIMULATION D'ESSAIS DE CSC SUR MATÉRIAU IRRADIÉ

Nous allons nous intéresser à la modélisation d'essais de corrosion sous contrainte sur des tubes de gainage en Zircaloy-4 détendu, irradiés durant deux cycles de fonctionnement en REP. Précisons que ces essais n'étant pas, à l'heure actuelle, réalisables sur matériaux irradiés, seules des simulations numériques ont été effectuées. Il existe, cependant, une méthode de préfissuration sur alliages non irradiés, qui sera présentée au prochain chapitre. Les objectifs de

ces calculs sont d'étudier différents paramètres mécaniques en pointe de fissure et leur évolution au cours de la propagation de la fissure.

### 3.2.1 Chargements modélisés

Les essais simulés sont des essais de CSC dits conventionnels. À la différence des essais réalisés sur matériaux irradiés, décrits au paragraphe 2.3, nous avons postulé que ces tubes présentaient un défaut initial de petite taille. La profondeur initiale de ce défaut est notée  $a_{ini}$ .

Au cours de ces essais, la pression interne  $p(t)$  est imposée. La montée en pression se fait à une vitesse constante  $\delta p$  jusqu'à ce que la pression maximale  $p_{max}$  soit atteinte, pression qui est ensuite maintenue constante. En parallèle, une fissure de corrosion sous contrainte se propage en mode purement transgranulaire à partir du défaut initial. Nous faisons l'hypothèse que la vitesse de propagation  $v_{TG}$  est constante (vitesse moyenne cohérente avec les valeurs mesurées). La propagation en CSC débute lorsque le facteur d'intensité des contraintes seuil  $K_{ICSC}$  est atteint en pointe de fissure ; on notera  $p_{CSC}$  la pression correspondant au franchissement de ce seuil. Le chargement mécanique tel que nous venons de le décrire est représenté à la figure VI-12.

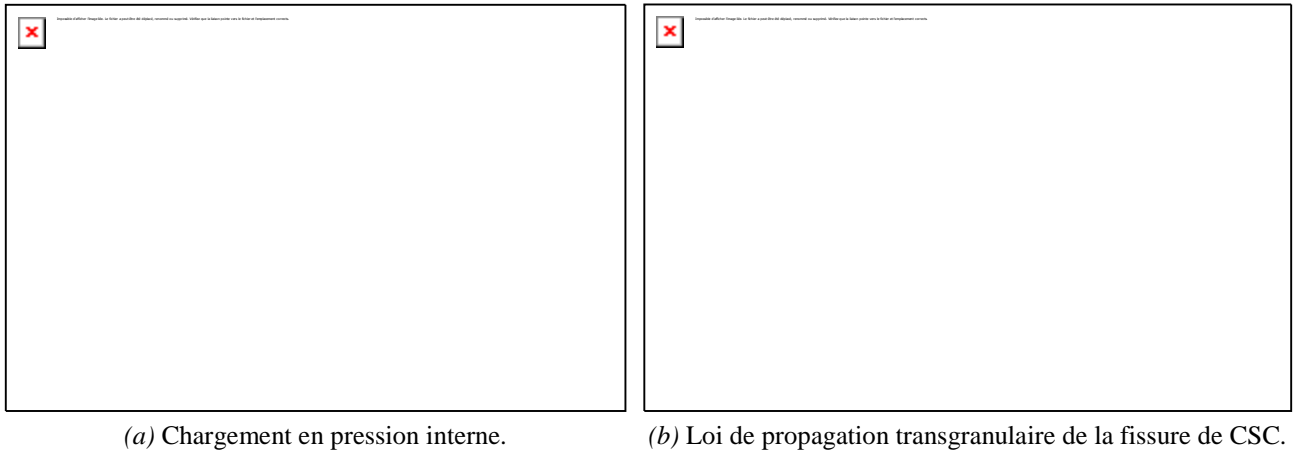


FIG. VI-12. Définition du chargement mécanique imposé lors des simulations d'essais de CSC sur Zircaloy-4 irradié durant deux cycles en REP.

Définissons maintenant les différentes valeurs que nous avons retenues.

- Le défaut initial a une profondeur de  $a_{ini} = 30 \mu m$ .
- Le facteur d'intensité des contraintes seuil  $K_{ICSC}$  est égal à  $1,5 MPa.m^{1/2}$ , ce qui correspond à une pression  $p_{CSC}$  de 196 bars. Cette valeur de  $K_{ICSC}$  est tirée du modèle de Schuster-Delette (voir chapitre IV), pour une fluence correspondant à deux cycles<sup>12</sup>.

Afin d'étudier le rôle de diverses grandeurs mécaniques sur la propagation de la fissure, différents trajets de chargement ont été calculés. Le tableau VI-7 regroupe ces différentes conditions de chargement.

La vitesse de montée en pression de  $2 bar.s^{-1}$  est celle imposée lors des essais en laboratoire (cf. paragraphe 2.1), tandis que la valeur de  $13 bar.s^{-1}$  correspond à la vitesse de variation de la contrainte circonférentielle calculée lors d'un transitoire de puissance. Les vitesses moyennes  $v_{TG}$  correspondent aux valeurs mesurées lors d'essais de CSC sur Zircaloy-4 détendu non irradié. Nous supposons que ces vitesses sont du même ordre de grandeur sur matériaux irradiés. Cette

<sup>12</sup> En toute rigueur, le facteur d'intensité des contraintes s'écrit sous la forme  $K_I = g(a, \dots) \Sigma_{\theta\theta} \sqrt{\pi a}$ , où  $g(a, \dots)$  est un facteur intégrant la géométrie tridimensionnelle de la fissure. Dans notre étude, nous avons pris ce facteur constant et égal à 1 ; cette valeur est en accord avec celles disponibles dans les abaques de la littérature (où elles évoluent avec  $a$ ).

hypothèse semble raisonnable si l'on considère que les mécanismes de la propagation transgranulaire sont identiques sur matériaux irradiés. Une expertise des quelques essais réalisés au CEA Grenoble sur matériaux irradiés, essais qui ont servi à intégrer l'influence de l'irradiation dans le modèle de Schuster-Delette, a montré que les valeurs issues de ces essais sous-estimaient les vitesses de propagation transgranulaire sur matériaux irradiés et que ces dernières seraient proches de celles observées sur matériaux non irradiés. Ce dernier point reste à préciser.

TABLEAU VI-7. Chargements mécaniques modélisés. Zircaloy-4 détendu irradié deux cycles.

Contrainte circonférentielle $\Sigma_{\theta\theta \text{ max}}$ (en MPa)	Pression $p_{\text{max}}$ (en MPa)	Vitesse de montée en pression $\delta p$ (en bar.s <sup>-1</sup> )	Vitesse de propagation transgranulaire moyenne $v_{\text{TG}}$ (en $\mu\text{m.s}^{-1}$ )
200	250	$\frac{2}{2}$	$\frac{1}{2}$
300	380	$\frac{2}{2}$ $\frac{2}{13}$	$\frac{1}{2}$ $\frac{2}{2}$
400	510	$\frac{2}{13}$	$\frac{1}{2}$

### 3.2.2 Domaine de validité du facteur d'intensité des contraintes $K_I$

Comme nous avons pu le voir aux chapitres III et IV, le facteur d'intensité de contraintes  $K_I$  est le paramètre mécanique utilisé pour décrire la propagation transgranulaire d'une fissure de corrosion sous contrainte. Mais, au vu des conditions thermomécaniques régnant en réacteur et en laboratoire, il est alors important de déterminer le domaine de validité de cette grandeur issue de la mécanique linéaire de la rupture, qui suppose que la zone plastique en pointe de fissure soit confinée.

Nous allons ainsi évaluer la profondeur de la fissure  $a_F$ , au-delà de laquelle l'approche en  $K_I$  n'est plus valide et sort de son cadre théorique, pour les différentes conditions mécaniques que nous avons simulées. Le principe de la méthode est simple ; il consiste à comparer les champs de contrainte, dans le voisinage de la fissure, obtenus lorsque le comportement du matériau est élastoviscoplastique avec ceux issus de calculs réalisés dans les mêmes conditions, où seule l'élasticité du matériau est prise en compte.

La figure VI-13 montre l'évolution comparée de la contrainte d'ouverture  $\Sigma_{\theta\theta}$  le long du ligament au cours de la propagation pour les calculs élastoviscoplastique et élastique. Dans cet exemple, la profondeur  $a_F$  a été évaluée à 175  $\mu\text{m}$ .

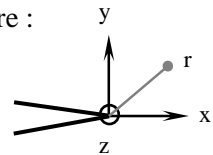
Notons qu'il est possible d'estimer la contrainte en pointe de fissure afin de vérifier les valeurs obtenues lors des calculs en élastoviscoplasticité.

En élasticité et en déformations planes ( $E_{zz} = 0$ ),  $r$  est la distance à la pointe de fissure :

$$\Sigma_{xx} = K_I / \sqrt{2\pi r}, \quad \Sigma_{yy} = K_I / \sqrt{2\pi r} + T \quad (\Sigma_{xx} \approx \Sigma_{yy}), \quad \Sigma_{zz} = \nu(\Sigma_{yy} + \Sigma_{xx}) \approx 2\nu\Sigma_{yy}$$

Utilisons le critère de Tresca :  $R_p \approx (1-2\nu)\Sigma_{yy}$ . D'où  $\Sigma_{yy} \approx R_p / (1-2\nu)$ .

Pour le Zircaloy-4 irradié deux cycles,  $R_p \approx 500$  MPa,  $\nu = 0,37$  et  $\Sigma_{yy} \approx 2000$  MPa, ce qui est du même ordre de grandeur que les valeurs issues des calculs conduits en DPG ( $E_{zz} \neq 0$ ).



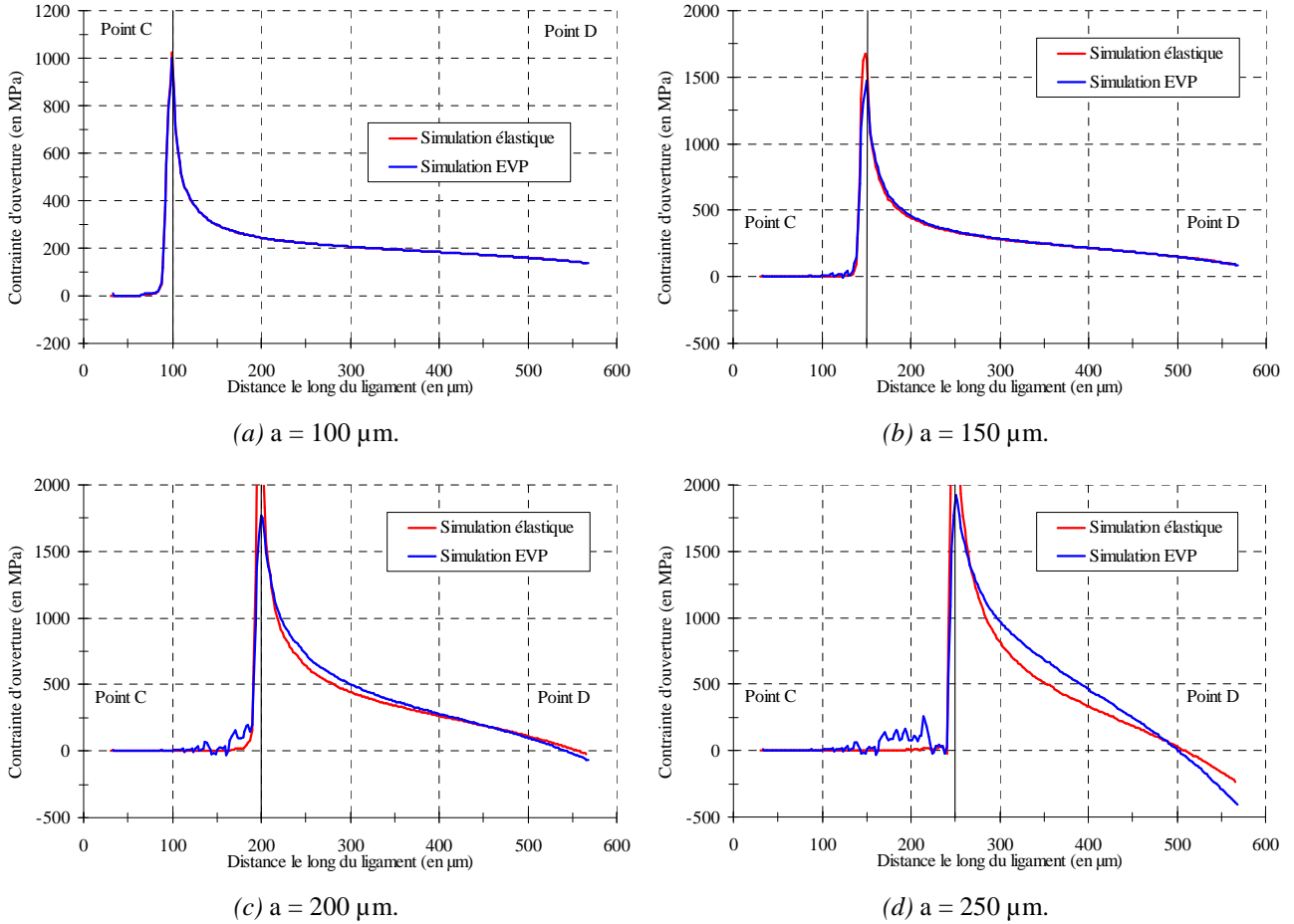


FIG. VI-13. Évolution de la contrainte d'ouverture  $\Sigma_{\theta\theta}$  au cours d'un essai de pressurisation interne ( $a_{ini} = 30 \mu\text{m}$ ,  $\Sigma_{\theta\theta max} = 300 \text{ MPa}$ ,  $v_{TG} = 2 \mu\text{m.s}^{-1}$ ) pour différentes profondeurs  $a$  de la fissure.

Le critère pour évaluer la validité de l'approche en  $K_I$  est le suivant :

$$\left| \frac{\Sigma_{\theta\theta \text{ Calculs élastiques}}(r) - \Sigma_{\theta\theta \text{ Calculs élastoviscoplastiques}}(r)}{\Sigma_{\theta\theta \text{ Calculs élastiques}}(r)} \right| \leq 0,05 \text{ pour } r > r_y,$$

où  $r$  est la distance à la pointe de fissure,  $r_y$  est le rayon de la zone plastique (estimé, par exemple, par la formule d'Irwin).

L'introduction du rayon  $r_y$  permet de ne pas tenir compte des champs de contrainte très proches de la pointe de fissure, où les contraintes sont infinies dans le cadre de la mécanique linéaire de la rupture et bornées lorsque le comportement du matériau est plastique. Dans un calcul numérique élastique, les contraintes au voisinage de la pointe de fissure ne sont pas infinies. Pour décrire au mieux la singularité, il faut disposer d'un maillage très fin en pointe de fissure, même si l'utilisation d'un comportement macroscopique n'est pas rigoureuse pour ces tailles de maille ( $2 \mu\text{m}$  pour notre maillage, ce qui correspond à la dimension d'un grain). Lorsque le champ de contraintes élastiques est obtenu à l'aide d'une solution analytique ou d'abaques issus de la littérature, la valeur de 5 %<sup>(13)</sup> permet de prendre en compte les écarts entre cette solution et le champ calculé par éléments finis. Dans notre cas, nous comparons les solutions élastique et élastoviscoplastique pour des calculs réalisés dans des conditions identiques.

Le tableau VI-8 synthétise les résultats obtenus pour les différents chargements modélisés.

<sup>13</sup> Les résultats que nous allons exposer ne sont pas modifiés si nous prenons une valeur inférieure à 5 %.

TABLEAU VI-8. Limite de validité de l'approche en  $K_I$ . Synthèse des résultats.

Contrainte circonférentielle $\Sigma_{\theta\theta \max}$ (en MPa)	Vitesse de montée en pression $\delta p$ (en bar.s <sup>-1</sup> )	Vitesse de propagation transgranulaire moyenne $v_{TG}$ (en $\mu\text{m.s}^{-1}$ )	Limite de validité Profondeur de fissure $a_F$ (en $\mu\text{m}$ )
200	2	1	$175 < a_F < 200^*$
	2	2	$175 < a_F < 225^*$
300	2	1	$125 < a_F < 150$
	2	2	$150 < a_F < 175^*$
	13	2	$100^* < a_F < 125$
400	2	1	$100 < a_F < 125^*$
	13	2	$80^* < a_F < 100$

\* : Valeur retenue pour dresser l'abaque de la figure VI-14, pour laquelle le critère n'est « tout juste » plus vérifié.

Il est alors possible de dresser un abaque (fig. VI-14) montrant comment évolue le domaine de validité de l'approche en  $K_I$  en fonction de la vitesse de montée en pression et de la vitesse moyenne de propagation.

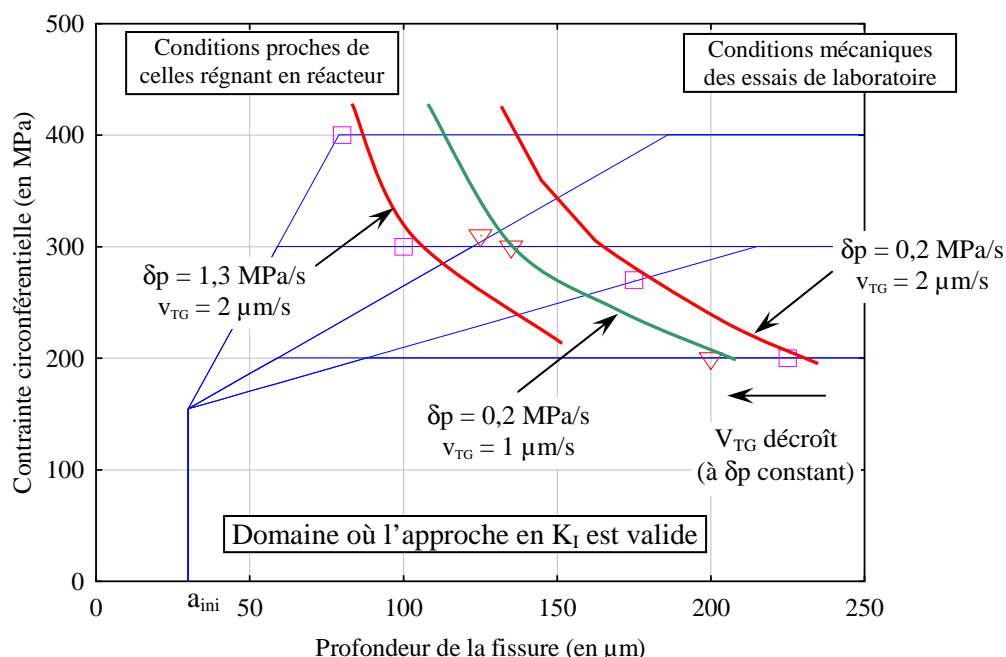


FIG. VI-14. Domaine de validité de l'approche en  $K_I$  (abaque). Résultats de simulations sur Zircaloy-4 détendu irradié deux cycles REP à la température de 350 °C.

En conclusion de cette étude, nous avons pu déterminer la limite de validité du facteur d'intensité des contraintes, paramètre qui est couramment utilisé dans la littérature pour décrire la propagation transgranulaire d'une fissure de corrosion sous contrainte. Il apparaît que cette grandeur mécanique n'est pas valide durant toute la propagation du défaut, mais seulement au début de celle-ci. Nous avons vérifié que le domaine de validité de  $K_I$  est identique lorsque le comportement viscoplastique du matériau est aussi bien isotrope qu'anisotrope. De plus, nous ne pouvons pas corréliser ces valeurs de  $a_F$  au passage d'un mode de propagation transgranulaire en CSC à un mode de rupture ductile, traduisant l'instabilité plastique de la structure, du fait que les profondeurs des fissures de corrosion sous contrainte  $a_{CSC}$  observées expérimentalement sont beaucoup plus importantes. Le domaine de validité de l'approche en  $K_I$  est fortement dépendant de la vitesse de propagation et de la vitesse de montée en pression. Ceci est à relier avec le

comportement viscoplastique du matériau qui devient prépondérant, par rapport au comportement élastique, plus ou moins rapidement en fonction des sollicitations mécaniques appliquées.

Il est à noter que les calculs et les observations de faciès n'ont pas été réalisés pour le même niveau d'irradiation. Cependant, le comportement mécanique du Zircaloy-4 détendu, ainsi que sa sensibilité à la CSC, n'évoluent plus de manière significative entre un et deux cycles d'irradiation, ce qui laisse supposer que les observations seront peu différentes pour le Zircaloy-4 détendu irradié deux cycles.

### 3.2.3 Évolution de la zone plastique

Il est également possible de suivre, pour les différentes conditions de chargement simulées, l'évolution de la zone viscoplastique, notamment sa forme et son étendue, au cours de la propagation d'un défaut de CSC. Nous avons tracé à la figure VI-15 un exemple des résultats obtenus, exemple représentatif de tous les calculs effectués.

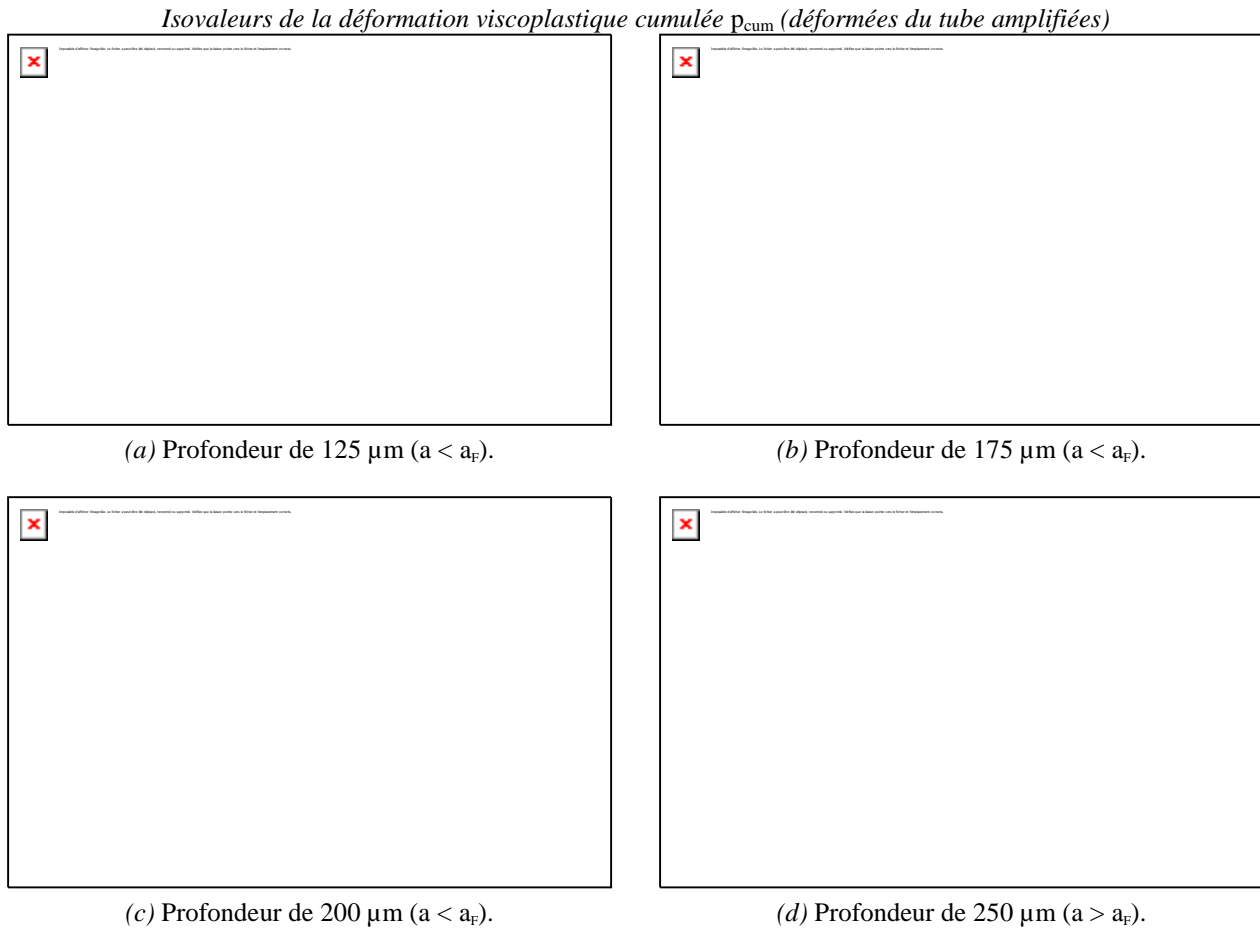


FIG. VI-15. Étendue de la zone viscoplastique en pointe de fissure pour différentes profondeurs d'un défaut de CSC. Chargement modélisé :  $\Sigma_{\theta\theta} = 200 \text{ MPa}$ ,  $\delta p = 2 \text{ bar.s}^{-1}$  et  $v_{TG} = 2 \mu\text{m.s}^{-1}$  à  $350^\circ\text{C}$ . Profondeur  $a_F$  estimée à  $225 \mu\text{m}$ . Zircaloy-4 détendu irradié deux cycles REP.

En accord avec la théorie de la mécanique linéaire de la rupture, la profondeur  $a_F$ , pour laquelle l'approche en  $K_I$  n'est plus valide, correspond à la profondeur de fissure où la zone viscoplastique (déformation viscoplastique cumulée  $p_{cum}$  supérieure à 0,002) n'est plus confinée en pointe de fissure. Les niveaux des déformations viscoplastiques sont faibles (en conformité avec l'hypothèse des petites déformations). De plus, il est important de noter que, pour des tailles

de défaut inférieures à  $a_F$ , ces déformations sont très localisées en pointe de fissure sur quelques éléments, c'est-à-dire, compte tenu de notre maillage, étendues sur quelques grains ; dans ce cas, il apparaît comme nécessaire de changer l'échelle de notre modélisation (au niveau des grains, avec des lois de comportement adaptées).

### 3.3 ANALYSE D'ESSAIS DE CHARGE/DÉCHARGE RÉALISÉS SUR MATÉRIAU NON IRRADIÉ

Dans ce paragraphe, il est question de la simulation des essais de CSC de charge/décharge qui ont été présentés au paragraphe 2.3.3. L'objectif de cette étude est, d'une part, d'évaluer les champs mécaniques hétérogènes régnant au sein des éprouvettes et, d'autre part, d'étudier le rôle des différents paramètres mécaniques sur la propagation d'une fissure de CSC, afin de corréler les résultats numériques obtenus avec les observations expérimentales.

#### 3.3.1 Conditions expérimentales modélisées

Le tableau VI-9 présente les différents essais qui ont été simulés<sup>14</sup>.

En plus du chargement en pression interne, nous avons simulé l'amorçage puis la propagation d'une fissure de corrosion sous contrainte. Le tube ne présente initialement aucun défaut (tube sain). Pour écrire une loi de propagation *simple*, nous nous sommes basés sur les différentes hypothèses retenues dans les modèles macroscopiques décrits au chapitre IV, à savoir que la propagation intergranulaire débute dès le franchissement d'une contrainte limite (nous avons toutefois négligé le temps nécessaire pour atteindre cette contrainte). Comme pour les simulations réalisées sur matériau irradié, nous faisons l'hypothèse forte, que les *vitesses de propagation* intergranulaire ( $v_{IG}$ ) et transgranulaire ( $v_{TG}$ ) sont *constantes* au cours des calculs et sont identiques quel que soit le chargement appliqué (fig. VI-16). Nous n'étudierons ainsi que les évolutions des paramètres mécaniques en pointe de fissure en fonction des sollicitations mécaniques imposées.

TABLEAU VI-9. Essais de CSC simulés sur Zircaloy-4 détendu non irradié.

Réf. calculs	Description de l'essai
1	Essai conventionnel $\Sigma_{\theta\theta} = 350$ MPa
2	Essai de charge/décharge $\Sigma_{\theta\theta H} = 430$ MPa, $\Sigma_{\theta\theta B} = 350$ MPa, sans palier haut (0 min)
3	Essai de charge/décharge $\Sigma_{\theta\theta H} = 430$ MPa, $\Sigma_{\theta\theta B} = 350$ MPa, avec palier haut (20 min)

À titre indicatif, la durée de mise en pression jusqu'à 350 MPa (resp. 430 MPa) est de 222 s (resp. 273 s).

Précisons maintenant les valeurs que nous avons retenues pour décrire la propagation :

- la vitesse intergranulaire  $v_{IG} = 0,01 \mu\text{m.s}^{-1}$  ;
- la vitesse transgranulaire  $v_{TG} = 1 \mu\text{m.s}^{-1}$  ;
- la profondeur de transition  $a_{IG-TG} = 50 \mu\text{m}$ .

Ces vitesses sont cohérentes avec les valeurs mesurées (phase transgranulaire) et estimées (phase intergranulaire) au CEA Grenoble et celles disponibles dans la littérature (voir par exemple [Cox 1990 b] et différentes figures du chapitre III). La profondeur de changement de mode correspond aux dimensions observées au MEB (voir paragraphe 2.3.3). Nous supposons que la fissure se propage dès la mise en pression afin de simplifier l'analyse des résultats. Dans ce cas, la profondeur de la fissure à la fin de la montée en pression est de 3  $\mu\text{m}$  environ, ce qui pourrait être la taille d'un défaut de fabrication du tube, ce qui ne remet pas en cause notre hypothèse.

<sup>14</sup> D'autres essais ont été simulés (durées de palier « haut » différentes...), mais ils ne seront pas présentés ici.

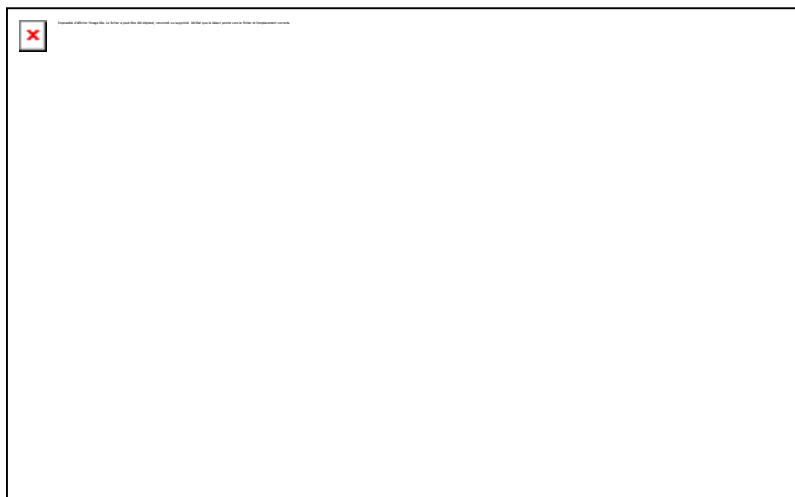


FIG. VI-16. Définition de la loi de propagation d'une fissure de CSC. Simulations d'essais sur Zircaloy-4 détendu non irradié. Vitesses moyennes d'après [Delette 1994].

### 3.3.2 Dépouillement des paramètres mécaniques en pointe de fissure<sup>15</sup>

Nous allons maintenant présenter l'évolution des différents paramètres mécaniques en pointe de fissure et déterminer leurs variations en fonction du chargement mécanique. Rappelons que les paramètres mécaniques (locaux) qui sont susceptibles de gouverner le processus de fissuration par corrosion sous contrainte sont : la contrainte, la déformation (visco)plastique et la vitesse de déformation (visco)plastique.

Traçons l'évolution de ces trois grandeurs en pointe de fissure au cours de la phase de propagation intergranulaire (profondeur de la fissure allant de 0 à 50  $\mu\text{m}$ , soit une durée de 5000 s). Les figures VI-17 à VI-19 montrent les résultats obtenus. Pour des raisons numériques, ces grandeurs sont en fait évaluées en avant de la fissure, dans la direction de propagation, à quelques microns de la pointe (2  $\mu\text{m}$  pour la contrainte  $\Sigma_{\theta\theta}$ , 6  $\mu\text{m}$  pour la déformation viscoplastique  $E_{\theta\theta}^{vp}$  et 10  $\mu\text{m}$  pour la vitesse de déformation viscoplastique  $\dot{E}_{\theta\theta}^{vp}$ ).

On constate une augmentation importante de la déformation plastique en pointe de fissure avec la durée du palier haut à 430 MPa. En revanche, les évolutions de la contrainte circonférentielle et de la vitesse de déformation plastique ne présentent que de faibles écarts au début de la propagation de la fissure (environ 100 MPa sur la contrainte et même ordre de grandeur pour la vitesse de déformation viscoplastique), c'est-à-dire lorsque les chargements imposés sont différents. Ensuite, ces grandeurs sont quasiment égales durant toute la suite de la propagation intergranulaire. En ce qui concerne la phase de propagation transgranulaire, les résultats, que nous n'exposerons pas ici, sont similaires, à savoir que les niveaux de déformation viscoplastique sont très différents entre les trois essais simulés, par contre, les évolutions des deux autres grandeurs mécaniques sont identiques.

En se basant sur les données de la littérature, il est intéressant de noter que les vitesses de déformation viscoplastique circonférentielle obtenues en pointe de fissure sont dans le domaine de vitesses où la sensibilité à la CSC est la plus importante (voir par exemple les figures III-4 et III-5).

<sup>15</sup> D'autres dépouillements ont été réalisés mais nous avons choisi de ne pas les présenter, car cela alourdirait inutilement notre propos, sachant que les seuls résultats exposés démontrent bien l'utilité de nos calculs par éléments finis des essais sur matériau non irradié et mettent bien en évidence les données expérimentales nécessaires à acquérir.



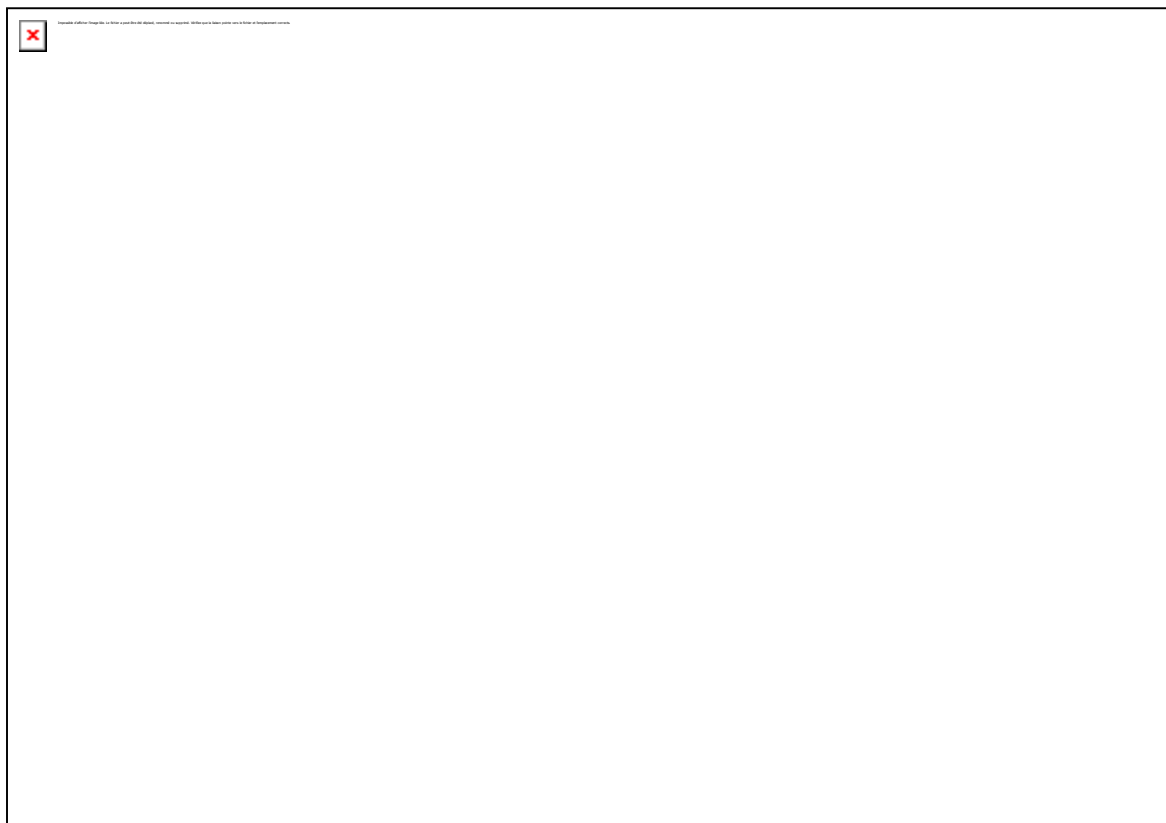


FIG. VI-17. Évolution de la déformation viscoplastique circonférentielle  $E_{\theta\theta}^{vp}$  en pointe de fissure au cours de la propagation.



FIG. VI-18. Évolution de la contrainte circonférentielle  $\Sigma_{\theta\theta}$  en pointe de fissure au cours de la propagation.

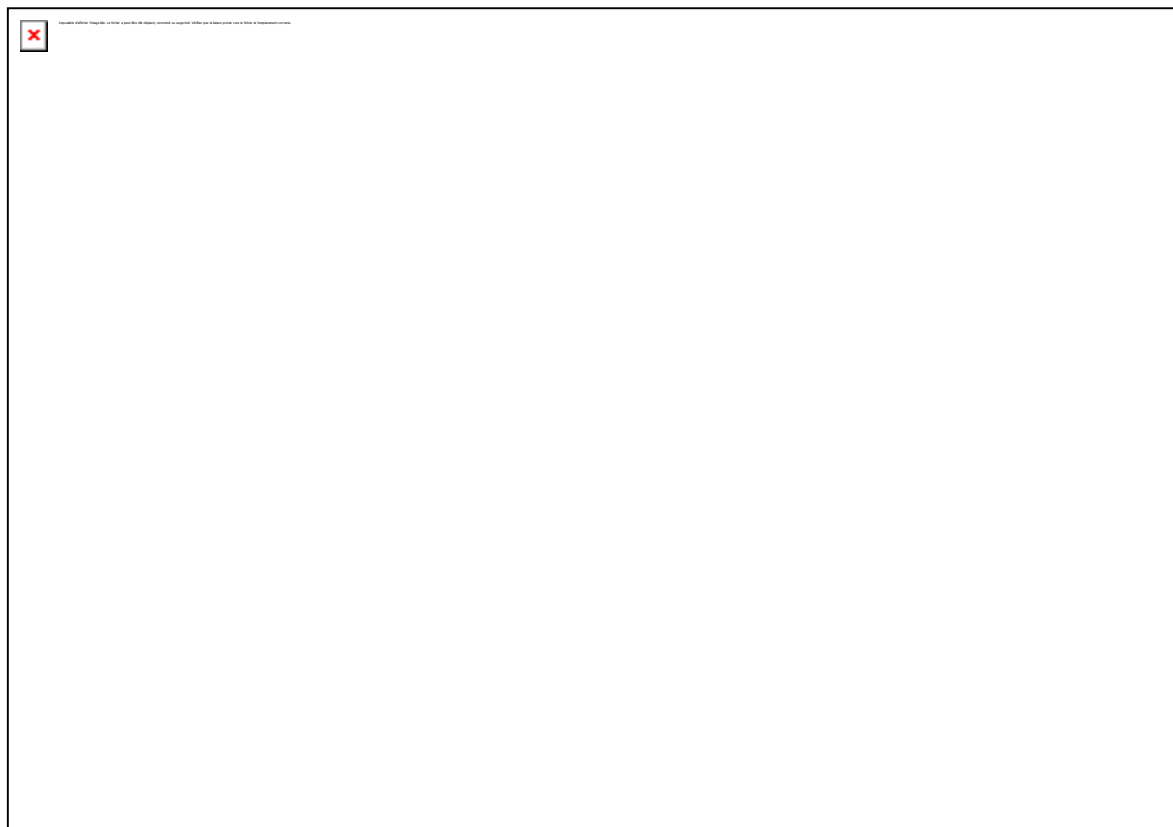


FIG. VI-19. Évolution de la vitesse de déformation viscoplastique circonférentielle  $\dot{E}_{\theta\theta}^{vp}$  en pointe de fissure au cours de la propagation.

En conclusion, au vu des calculs et des hypothèses retenues, le pilotage de la fissuration par la déformation plastique en pointe de fissure ne semble pas être compatible avec les résultats expérimentaux obtenus, c'est-à-dire des durées de vie identiques malgré des déformations très différentes. Par contre, il n'est pas possible de discriminer entre les deux paramètres que sont la contrainte et la vitesse de déformation. Toutefois, il est important de vérifier l'hypothèse forte de nos calculs où nous supposons une propagation intergranulaire lente débutant dès les premiers instants de la mise en charge. Ce point essentiel sera étudié dans le chapitre suivant.

### 3.4 CONCLUSIONS SUR LA SIMULATION D'ESSAIS DE CSC

Dans ce paragraphe, nous avons montré l'apport du calcul de structures pour estimer les champs mécaniques locaux et étudier le rôle de différents paramètres mécaniques sur la propagation d'une fissure de CSC. Outre un apport dans la compréhension des mécanismes, cette démarche peut être utilisée pour aider à la conception de nouveaux essais de corrosion sous contrainte.

## 4 CONCLUSIONS

Ce chapitre a mis en évidence l'intérêt d'une approche couplée entre études expérimentales et simulations numériques afin d'affiner notre connaissance du rôle des paramètres mécaniques locaux sur la propagation d'une fissure de corrosion sous contrainte par l'iodure des alliages de zirconium. Ceci nous a également aidé à concevoir un nouvel essai de CSC, dont les résultats expérimentaux ne nous ont pas permis, contrairement à ce que nous attendions, de trancher sur le rôle des différentes grandeurs mécaniques, même s'il semble que nous puissions, d'ores et déjà, exclure la déformation viscoplastique de la liste des paramètres.

Toutefois, nos simulations numériques sont fortement dépendantes des hypothèses de calculs que nous retenons, et notamment des vitesses de propagation que nous avons considérées. De même, lors de la conception de l'essai de « charge/décharge », nous nous sommes basés sur l'hypothèse très forte que la propagation d'une fissure de CSC débutait dès la mise en charge, comme il est couramment admis dans la littérature (sous réserve de franchir une contrainte « seuil » dont la définition n'est toutefois pas claire – voir la partie A du mémoire).

Il se pose alors la question de la validité des vitesses de propagation intergranulaire moyennes que nous avons utilisées. Ces valeurs sont cohérentes avec celles issues de la littérature. Rappelons qu'elles ne sont pas mesurées, mais seulement estimées par méthode inverse à partir de la connaissance expérimentale des vitesses de propagation transgranulaire.

Sachant que l'amorçage et la propagation intergranulaire d'un défaut de CSC sont supposés constituer 80 % du temps à rupture, il est donc primordial de mieux connaître la loi de propagation horaire d'un défaut de CSC lors de nos essais. Surtout, la question de l'existence ou non d'une fissure au cours du palier haut est posée.

Le prochain chapitre a pour objet de répondre à ces questions. Pour cela, un programme spécifique a été mis en œuvre sur la base d'essais de CSC interrompus associés à des observations en microscopie électronique à balayage.

## CHAPITRE VII.

### ÉTUDE DE L'AMORÇAGE ET DE LA PROPAGATION DES FISSURES DE CORROSION SOUS CONTRAINTE DANS LES ALLIAGES DE ZIRCONIUM

Au vu des résultats expérimentaux et des simulations numériques par éléments finis associées, décrits au chapitre précédent, il nous est apparu comme important de mieux connaître la loi de fissuration par corrosion sous contrainte du Zircaloy-4 détendu, afin d'expliquer les résultats des essais de CSC dits de « charge/décharge » et d'affiner nos calculs. Notamment, nous devons répondre à la question concernant l'existence ou non d'un défaut de CSC lors du palier « haut » de l'essai de charge/décharge. Nous allons, dans un premier temps, étudier cette question. Puis, compte tenu des résultats acquis, nous aborderons à nouveau l'analyse des paramètres mécaniques jouant un rôle clé dans la corrosion sous contrainte des alliages de zirconium. Sauf indication particulière, toutes les études (observations MEB et essais), présentées dans ce chapitre, ont été menées sur des tubes en Zircaloy-4 détendu provenant uniquement du « lot C ».

Les travaux présentés dans ce chapitre ont bénéficié de la contribution très importante du Professeur Ivan Nedbal, spécialiste de fractographie, lors de ses nombreux séjours au laboratoire MSS-Mat de l'École Centrale Paris.

## 1 OBSERVATIONS AU MEB DES ESSAIS DE CHARGE/DÉCHARGE

Il est important de pouvoir comparer plus précisément la propagation de défauts de CSC au cours des essais de charge/décharge et conventionnels afin de comprendre quel est l'effet du palier « haut » sur les champs mécaniques en pointe de fissure. Rappelons que nous avons supposé, en accord avec la littérature, qu'un défaut de CSC s'amorçait lors de la mise en charge (franchissement d'une contrainte « seuil »), puis se propageait de manière intergranulaire à des vitesses « lentes », comparativement à l'étape transgranulaire.

### 1.1 PRINCIPE DES ESSAIS INTERROMPUS ET MÉTHODOLOGIE D'OBSERVATION

Du fait du dispositif de pressurisation interne utilisé, il n'est pas possible de suivre en continu l'évolution de la propagation d'une fissure au cours d'un essai quel qu'il soit. Nous avons dû adopter une autre méthodologie d'observation des défauts.

Cette méthode consiste à réaliser des essais de CSC interrompus, tout en conservant le protocole expérimental exposé au chapitre précédent. Nous pourrions ainsi accéder à quelques points de la loi de fissuration  $a(t)$ . Le tableau VII-1 décrit l'ensemble des essais interrompus réalisés. Rappelons que les durées de vie pour les différentes conditions de chargement en CSC ont été présentées au chapitre précédent dans le tableau VI-3.

La détermination de la taille des fissures de CSC se fait ensuite par observation au microscope électronique à balayage (MEB) d'un échantillon prélevé dans le tube. Cet échantillon correspond à une portion d'un demi-tube découpé dans l'éprouvette, cette portion étant ensuite aplatie mécaniquement à la température ambiante<sup>1</sup>. L'aplatissement du demi-tube a pour conséquence

---

<sup>1</sup> Cette méthode d'écrasement d'un échantillon est couramment utilisée pour observer l'endommagement par CSC qui s'est développé dans les gaines de crayons combustibles ayant subi un transitoire de puissance important en réacteur expérimental (cf. chapitres I et II). Nous n'avons fait que transposer cette méthode à notre problème.

d'ouvrir les fissures de CSC existantes mais aussi d'éventuels défauts de fabrication. Toutefois, lorsque la longueur axiale d'un défaut est supérieure à 10  $\mu\text{m}$ , il est possible, suite à l'écrasement, d'observer les faciès du défaut sur quelques micromètres suivant l'épaisseur du tube. Nous pouvons ainsi déceler, pour les défauts de CSC, les premiers instants de la fissuration intergranulaire.

Notons que les échantillons ont été observés au MEB avant et après écrasement. Nous reviendrons ultérieurement sur les avantages et inconvénients de cette méthode d'écrasement.

TABLEAU VII-1. Description des essais interrompus réalisés sur le « lot C » à 350 °C.

<i>Essais conventionnels interrompus</i>				
<i>Milieu</i>	$\Sigma_{\theta\theta}$ (en MPa)	<i>Durée de l'essai</i> (en h)	<i>Déformation</i> $E_{\theta\theta}^{vp}$	<i>Vitesse moyenne</i> $\dot{E}_{\theta\theta}^{vp}$ (en $s^{-1}$ )
Inerte	350	5,3	0,0034	$2,0 \cdot 10^{-7}$
Iode	350	1,1	0,0022	$5,9 \cdot 10^{-7}$
	350	3,0	0,0037	$3,4 \cdot 10^{-7}$
	430	1,1	0,0073	$1,9 \cdot 10^{-6}$

<i>Essais de charge/décharge interrompus</i> $\Sigma_H = 430 \text{ MPa}$ , $\Sigma_B = 350 \text{ MPa}$ , palier haut de 60 min		
<i>Milieu</i>	<i>Durée de l'essai</i> (en h)	<i>Déformation</i> $E_{\theta\theta}^{vp}$
Inerte	5,3	0,0074
	5,3	0,0072
Iode	3,0	0,0082
	4,5	0,0083

La préparation de l'échantillon observé étant « destructive », il n'est pas possible de suivre l'évolution d'un même défaut jusqu'à la rupture de l'éprouvette. Il faut donc, pour chaque durée souhaitée et pour chaque type d'essai (conventionnels ou de charge/décharge), utiliser une nouvelle éprouvette.

Les champs mécaniques étant « homogènes » dans la partie utile de l'éprouvette (environ 100 mm), nous pouvons estimer qu'il doit exister un certain nombre de défauts de CSC tout le long du tube, pouvant être détectés lors de l'observation d'une surface importante de la face interne du tube.

## 1.2 MISE EN ÉVIDENCE D'UNE PHASE DITE D'« INCUBATION »

Le tableau VII-2 dresse un bilan des essais (interrompus ou non) qui ont été observés à l'aide de la méthode d'écrasement. Nous avons également caractérisé, par la même méthode, l'état initial de la gaine et la surface interne d'un tube ayant subi un chargement mécanique en milieu inerte.

Dans un premier temps, nous avons observé, suivant la méthodologie décrite ci-dessus, les surfaces internes de quelques essais de CSC qui ont été conduits jusqu'à rupture. Outre le défaut principal débouchant, il est important de noter qu'il n'apparaît que très peu de défauts secondaires (de longueur axiale variant de 20 à 400  $\mu\text{m}$ ) sur la face interne de ces tubes. Ceci rend fastidieux la détection de petits défauts d'une vingtaine de micromètres, puisqu'il est nécessaire de couvrir une grande partie de la surface interne des tubes.

TABLEAU VII-2. Essais de pressurisation interne réalisés sur le « lot C » à la température de 350 °C dont la surface interne a été observée après écrasement de l'échantillon.

Réf.	Description de l'essai	Milieu
IN0	État initial du tube (à réception de la matière)	//
IN3	Essai de charge/décharge interrompu après 5,3 h	Inerte
IN2	Essai conventionnel à 350 MPa interrompu après 1,1 h	Iode
LR3	Essai conventionnel à 350 MPa interrompu après 3,0 h	
LR1	Essai conventionnel à 350 MPa rompu après 5,63 h (C_0c_3)	
LR4	Essai conventionnel à 430 MPa interrompu après 1,1 h	
LR5	Essai de charge/décharge interrompu après 3,0 h	
IN1	Essai de charge/décharge interrompu après 4,5 h	
LR2	Essai de charge/décharge rompu après 5,03 h (C_0c_D3)	

À la suite de cette campagne d'essais interrompus, les résultats obtenus peuvent être résumés de la manière suivante : lors des essais de CSC conventionnels pour une contrainte circonférentielle de 350 MPa, et des essais de charge/décharge avec un palier haut à 430 MPa d'une durée de 60 minutes, nous n'avons pas décelé de fissures de CSC lorsque la durée de l'essai est inférieure à 3 heures. Les premiers défauts de CSC observés correspondent à une durée d'essai de 4,5 heures. Tous ces défauts sont de très petite taille : entre 10 et 20  $\mu\text{m}$  de longueur axiale, soit 3 à 4  $\mu\text{m}$  de propagation intergranulaire.

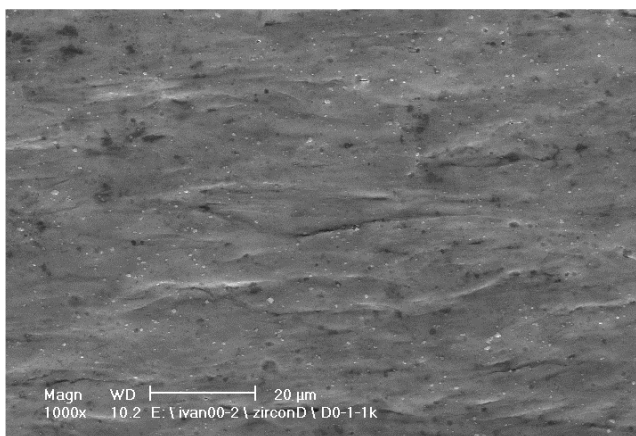
La figure VII-1 montre quelques exemples de surfaces internes observées après écrasement, pour différentes sollicitations mécaniques. Les figures VII-1a, b et c ne montrent aucune fissuration, tandis que la figure VII-1d montre un défaut de CSC venant de s'amorcer, ayant une extension axiale de 10  $\mu\text{m}$ , défaut ouvert suite à l'aplatissement de l'échantillon. La figure VII-1c montre également une fissuration importante de la couche d'oxyde que l'on n'observe pas en milieu inerte (fig. VII-1b).

Ces résultats sont d'autant plus surprenants que nous nous attendions à observer des défauts de taille plus conséquente. En effet, considérant une vitesse moyenne de propagation intergranulaire de  $0,005 \mu\text{m.s}^{-1}$ , en accord avec la littérature, un ou plusieurs défauts d'une profondeur voisine de 15  $\mu\text{m}$ , avec une extension axiale importante (environ 100  $\mu\text{m}$ ), auraient dû être observés après une heure d'essai. Par ailleurs, cette probabilité d'observer des défauts de taille importante augmente avec la durée de l'essai. Or ce n'est absolument pas le cas d'après nos observations.

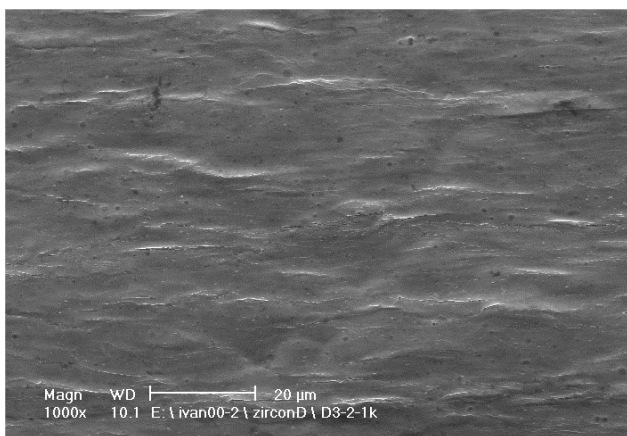
En conclusion de cette campagne d'observations d'essais interrompus, nous avons pu mettre en évidence que, dans nos essais, l'amorçage de fissures de CSC n'apparaît qu'à l'issue d'une phase, que nous qualifierons par la suite « *d'incubation* ». Cette phase constituant une part très importante de la durée de vie, l'amorçage puis la propagation des défauts de corrosion sous contrainte seraient alors beaucoup plus courtes que les durées généralement admises. Les vitesses de propagation intergranulaire auraient été, notamment, largement sous-estimées.

### 1.3 ÉTUDE DE LA PHASE D'« INCUBATION »

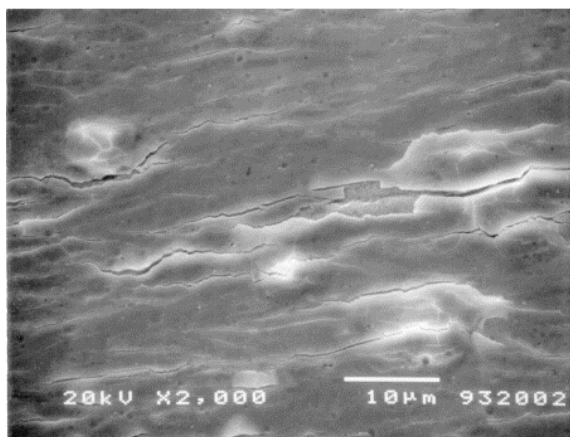
Après avoir mis en évidence cette phase dite d'« incubation », il convient de déterminer l'origine et les mécanismes de ce phénomène. Ceci nous aidera également dans notre étude du (ou des) paramètre(s) gouvernant l'amorçage des défauts de CSC.



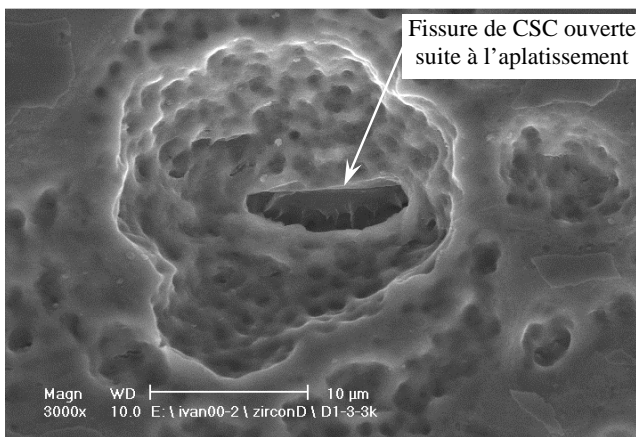
(a) État de surface initial de la gaine (réf. IN0).



(b) Essai de charge/décharge en milieu inerte interrompu après 5,3 heures d'essai (réf. IN3).



(c) Essai de charge/décharge interrompu de CSC après 3 heures d'essai (réf. LR5). Observation de la fissuration de la couche d'oxyde suite à l'écrasement.



(d) Essai de charge/décharge de CSC interrompu après 4,5 heures d'essai (réf. IN1). Présence d'un défaut de CSC typique de ceux observés sur les échantillons.

Repère pour les photos :

Direction axiale du tube



Direction circonférentielle



FIG. VII-1. Exemples de surfaces internes observées au MEB après aplatissement de l'échantillon pour différentes sollicitations mécaniques et chimiques à 350 °C.

Plusieurs hypothèses sont possibles :

1. La phase d'incubation correspondrait au temps nécessaire pour la mise à nu du métal, par attaque chimique, en présence d'iode, de la couche de zircone formée préalablement ou au cours de l'essai, et/ou par fissuration mécanique de cette dernière.
2. Cette phase serait liée au piégeage et à l'élimination de l'oxygène résiduel (effet propre à l'essai de pressurisation interne).

Analysons en premier lieu la seconde hypothèse. Nous avons vu au chapitre III que la présence d'oxygène inhibe, dans certaines conditions, le processus de corrosion sous contrainte des alliages de zirconium par l'iode. Bien que nous ne soyons pas capables de l'évaluer précisément, nous pouvons estimer que l'oxygène résiduel est en quantité très faible dans le tube par rapport à la concentration (saturée) en iode vapeur, suite aux rinçages multiples de l'éprouvette avant son enfournement. Nous sommes *a priori* dans des conditions favorables à la CSC. Il nous semble que cette hypothèse puisse être exclue ou, du moins, qu'elle soit du second ordre. La phase d'incubation serait plutôt liée à la présence de la couche de zircone passive, dont l'épaisseur est d'une vingtaine de nanomètres, et aux interactions entre l'iode, le zirconium et cette couche de zircone.

### 1.3.1 Influence de la sollicitation mécanique et de la durée d'exposition

Nous avons alors repris nos observations de la paroi interne de tubes soumis à des sollicitations mécaniques et à des durées d'exposition à l'iode différentes (tableau VII-2). Contrairement à la méthodologie utilisée précédemment, nous n'avons pas procédé à l'aplatissement de la portion de tube. En effet, ce dernier entraîne une fissuration de la couche d'oxyde, voire à sa desquamation en certains endroits. Autant cette méthode permettait de mieux détecter les rares défauts de CSC en les ouvrant, autant elle est inadaptée à notre étude de la phase d'incubation. Comme au paragraphe précédent, nos observations sont systématiquement comparées à l'état initial de la surface interne des tubes et à celle d'essais de pressurisation interne réalisés en milieu inerte.

La figure VII-2 montre, pour quelques-uns des échantillons observés, l'état typique de la paroi interne. Nous constatons la présence de multiples « cratères », conséquence de l'attaque chimique du métal par l'iode, puisque ces « cratères » ne sont observés qu'en présence d'iode. Cette attaque est couplée avec la sollicitation mécanique, comme le montrent les observations réalisées après essais interrompus pour la même durée d'exposition à l'iode, mais pour des chargements mécaniques différents (fig. VII-2c et VII-2d). Plus le chargement est important, plus l'attaque chimique est précoce.

La profondeur moyenne de ces « cratères » a été estimée par de multiples polissages d'un même échantillon, la section polie du tube étant observée par microscopie optique. Pour tous les échantillons observés, dont les durées d'exposition vont de une à 6 heures, cette profondeur moyenne est environ de 4  $\mu\text{m}$ . Cette valeur est indépendante de la durée d'exposition à l'iode et correspond à la dimension de deux grains de l'alliage étudié. Par contre, nous n'avons pas établi de statistiques sur la distribution de ces cratères (nombre et taille) et leur évolution au cours de l'essai.

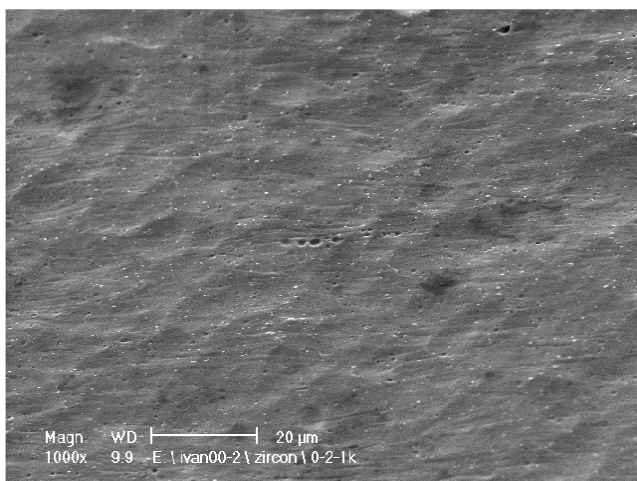
La figure VII-3 synthétise l'ensemble des observations MEB réalisées pour l'étude de la phase d'incubation. Sur cette figure, nous constatons que la formation des « cratères » semble être une étape préliminaire à l'observation des fissures de CSC. De plus, le palier haut a une influence sur l'apparition des cratères, mais n'a aucun effet notable sur l'apparition des fissures de CSC. Toutefois, nous ne pouvons pas, à ce stade de l'étude, corrélérer les cratères aux fissures de la couche d'oxyde.

### 1.3.2 Iode et couche de zircon

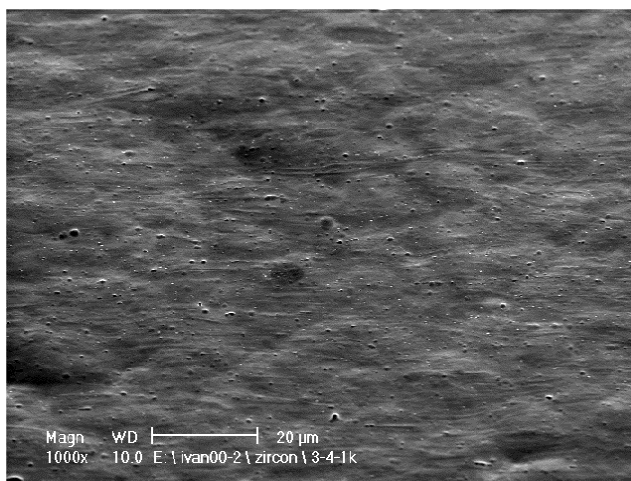
Nous allons maintenant nous intéresser à l'interaction entre l'iode et la couche d'oxyde passive. Sur la figure VII-4, il est possible de visualiser la couche d'oxyde en rapport avec les cratères formés. Cette dernière ne recouvre pas le cratère mais apparaît comme épaisse (environ 50 nm) comparativement à la couche passive initiale dont l'épaisseur est estimée à une vingtaine de nanomètres. Au vu de ces observations, nous nous sommes alors posé la question de l'oxygène résiduel et de la croissance de la couche d'oxyde initiale au cours de l'essai de pressurisation interne, augmentation d'épaisseur qui viendrait entraver le processus de CSC et qui ne serait qu'un artefact lié à notre dispositif expérimental. Pour tenter de répondre à cette question, des mesures<sup>2</sup> d'épaisseur de la couche d'oxyde ont été réalisées par diffraction des rayons X. Les échantillons étudiés (réf. IN0, IN1, IN2, IN3 du tableau VII-2) correspondaient aux portions de tube ayant été écrasées puis observées au MEB. Une variation de l'épaisseur de la couche d'oxyde au cours des essais n'a pu être mise en évidence, car les épaisseurs restent faibles. En effet, cette méthode de mesure n'a donné qu'une borne supérieure de l'épaisseur des différentes couches mesurées ( $\leq 300$  nm).

<sup>2</sup> Ces mesures ont été réalisées au CEA Saclay par Jean-Luc Béchade.

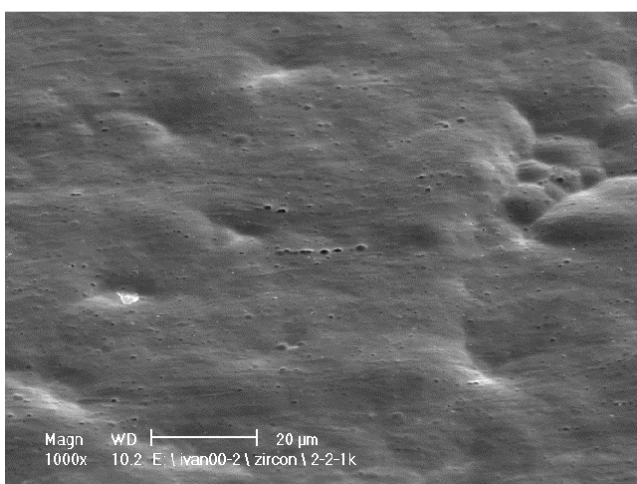
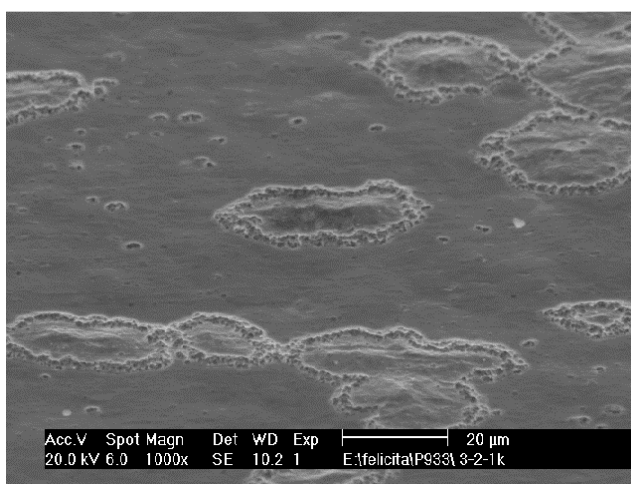
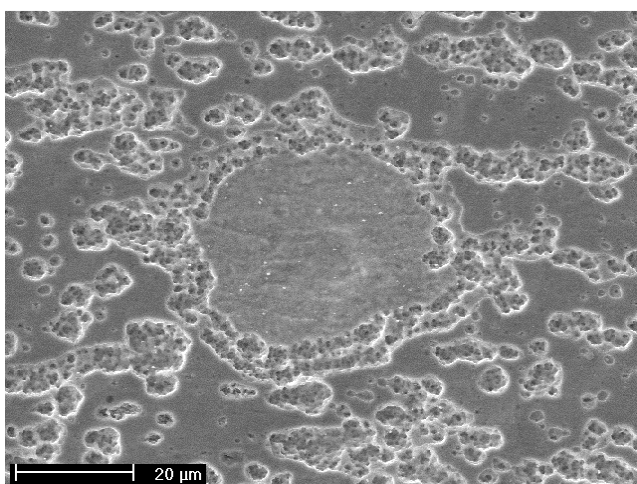




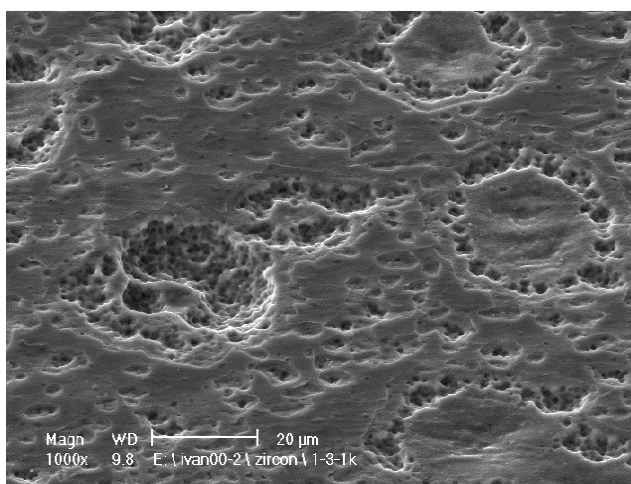
(a) État de surface initial de la gaine (réf. IN0).



(b) Essai de charge/décharge en milieu inerte interrompu après 5,3 heures d'essai (réf. IN3).

(c) Essai conventionnel de CSC,  $\Sigma_{\theta\theta} = 350$  MPa, interrompu après une heure d'essai (réf. IN2).(d) Essai conventionnel de CSC,  $\Sigma_{\theta\theta} = 430$  MPa, interrompu après une heure d'essai (réf. LR4).

(e) Essai de charge/décharge de CSC interrompu après 3 heures d'essai (réf. LR5).



(f) Essai de charge/décharge de CSC interrompu après 4,5 heures d'essai (réf. IN1).

Repère pour les photos :

Direction axiale du tube

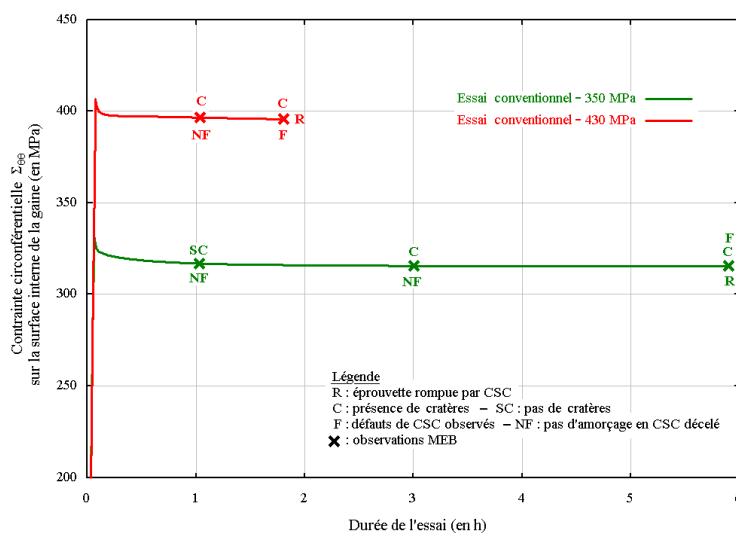


Direction circonférentielle



FIG. VII-2. Observations au MEB de la surface interne de tubes soumis à différentes sollicitations mécaniques et durées d'exposition à l'iode à la température de 350 °C. Étude de la phase d'incubation pour le Zircaloy-4 dans l'état métallurgique détendu.

(a) Essais conventionnels.



(b) Essai de charge/décharge, palier haut de 60 min.

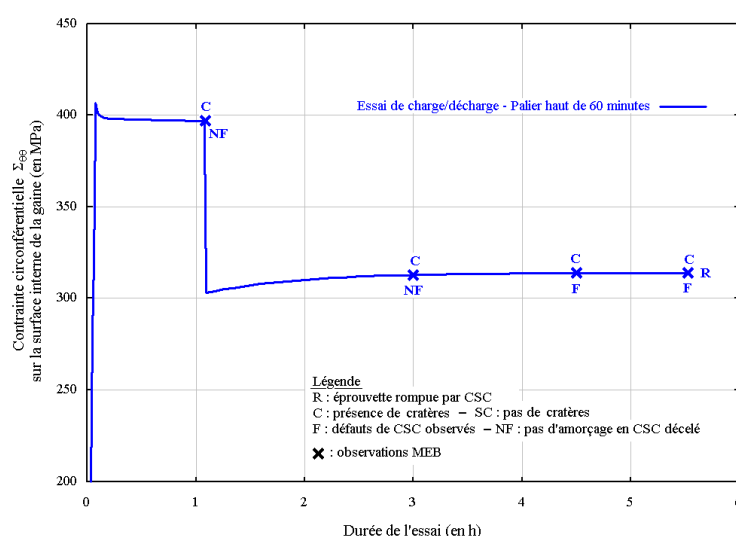
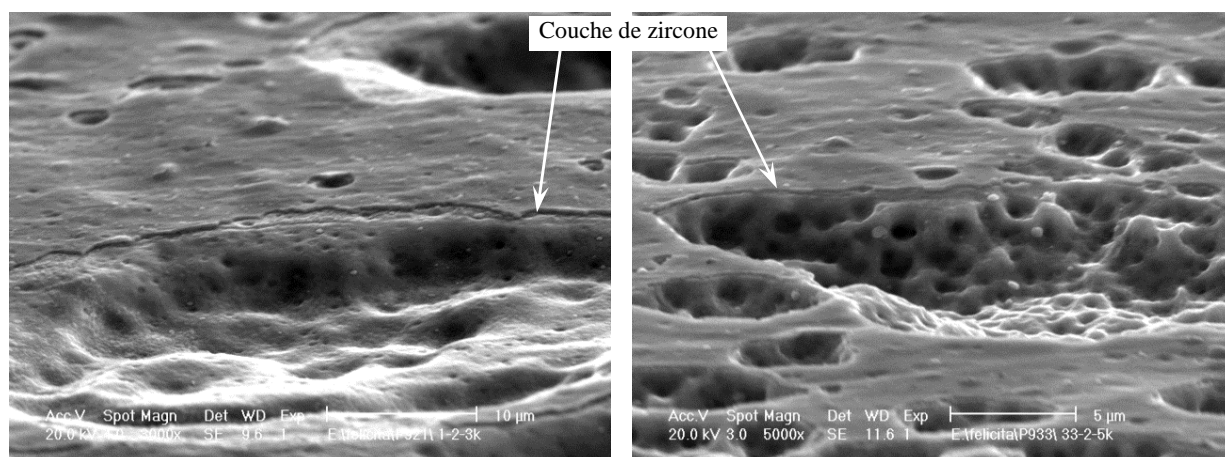


FIG. VII-3. Bilan des observations MEB réalisées pour l'étude de la phase d'incubation et de l'amorçage des défauts de CSC. Essais conventionnels et de charge/décharge réalisés à la température de 350 °C sur Zircaloy-4 détendu non irradié.



(a) Essai de CSC conventionnel à une contrainte  $\Sigma_{\theta\theta}$  de 350 MPa, rompu après 5,6 h (réf. LR1).

(b) Essai de CSC conventionnel à une contrainte  $\Sigma_{\theta\theta}$  de 350 MPa, interrompu après 3 h (réf. LR3).

Attention aux effets d'optique : pour ces observations, les échantillons ont été inclinés.

Repère pour les photos :

Direction axiale du tube  $\longleftrightarrow$

Direction circonférentielle  $\updownarrow$

FIG. VII-4. Quelques exemples d'observations MEB de la couche d'oxyde lors d'essais de CSC.

Cependant, avec cette méthode de diffraction par rayons X, il est possible d'accéder à la composition chimique du matériau sur une épaisseur de 7  $\mu\text{m}$ . Sur l'échantillon référencé IN2 (essai conventionnel à une contrainte  $\Sigma_{00}$  de 350 MPa interrompu après une heure d'essai), la présence d'iode ou d'un de ses composés a pu être détectée par cette méthode. Par contre, pour les autres échantillons exposés à l'iode sur des durées plus importantes, l'iode n'a pu être mis en évidence. Ceci constitue un résultat intéressant qu'il convient d'analyser. En effet, les échantillons aplatis, où la présence d'iode n'a pas été détectée, présentaient une desquamation, parfois importante, de la couche d'oxyde (fig. VII-5). Cette desquamation n'est pas du tout observée pour les essais en milieu inerte de durée équivalente. Ceci indiquerait une fragilisation de la couche d'oxyde par la présence d'iode, l'écrasement entraînant la disparition de l'iode de l'échantillon. En effet, on parle souvent de fissuration mécanique de la couche d'oxyde protectrice comme étape préliminaire du processus de corrosion sous contrainte. Mais qu'en est-il des interactions chimiques ?

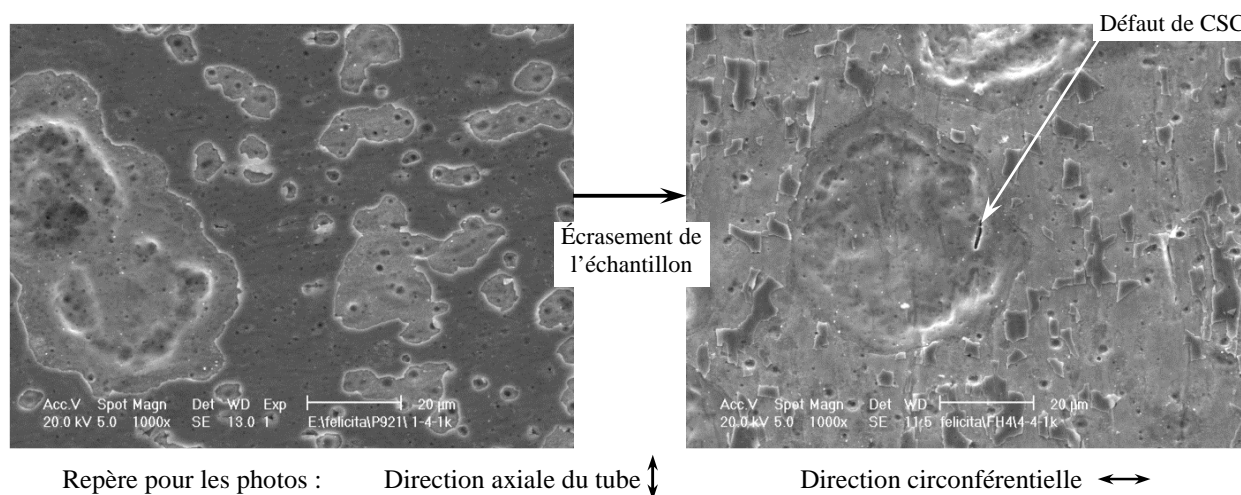


FIG. VII-5. Desquamation de la couche d'oxyde suite à l'écrasement de l'échantillon (essai de CSC conventionnel,  $\Sigma_{00} = 350$  MPa, durée de vie de 5,6 heures).

Afin de répondre à cette question, nous avons observé la surface interne d'un tube n'ayant été soumis qu'à l'action de l'iode à la température de 350 °C. En fait, le tube était légèrement pressurisé sous 6 bars ( $\Sigma_{00} \approx 5$  MPa). Cette pression s'est maintenue tout au long de l'essai, indiquant qu'il n'y a pas eu de fuite et donc une éventuelle pénétration d'oxygène. Cet essai a été interrompu après 150 heures. La durée de cet essai est importante comparativement aux durées des essais de CSC jusqu'à présent considérés. Se pose alors la question de la disponibilité de l'iode tout au long de l'essai ; la présence d'une couleur brune lors du rinçage du creuset où est déposé l'iode montre qu'il restait encore de l'iode disponible après 150 heures.

La figure VII-6 illustre l'état typique de la paroi interne observée à la fin de cet essai. On retrouve la présence des cratères, conséquence de l'attaque chimique par l'iode. Ceci démontre que la couche d'oxyde est perméable à l'iode et ne joue pas un rôle de barrière protectrice comme on pouvait le penser. L'iode est donc capable de traverser la couche d'oxyde passive et d'attaquer ensuite le métal. On peut voir sur la figure VII-6c les étapes de cette attaque chimique de la couche d'oxyde par la formation de ce que nous appellerons une « cloque ». Les mécanismes d'interaction entre l'iode et la couche de zircone sont méconnus. La molécule d'iode diffuse-t-elle lentement dans la couche de zircone du fait de la présence de défauts, ou l'iode forme-t-il des complexes chimiques avec la zircone (ce qui pourrait expliquer la détection de composés Zr-I-O, comme il a été mentionné au § 2.3 du chap. III) ? Toutefois, nous pouvons penser que, lors de la traversée par l'iode de la couche de zircone, les fortes distorsions du réseau de la zircone créées par la présence de l'iode entraînent la formation d'une « cloque ». Cette

« cloque » se fissure, puis se détache de la paroi du tube, laissant alors apparaître le cratère qui s'était formé en dessous. Ce mécanisme d'attaque chimique nous semble correct au vu des observations au MEB, même s'il reste à préciser.

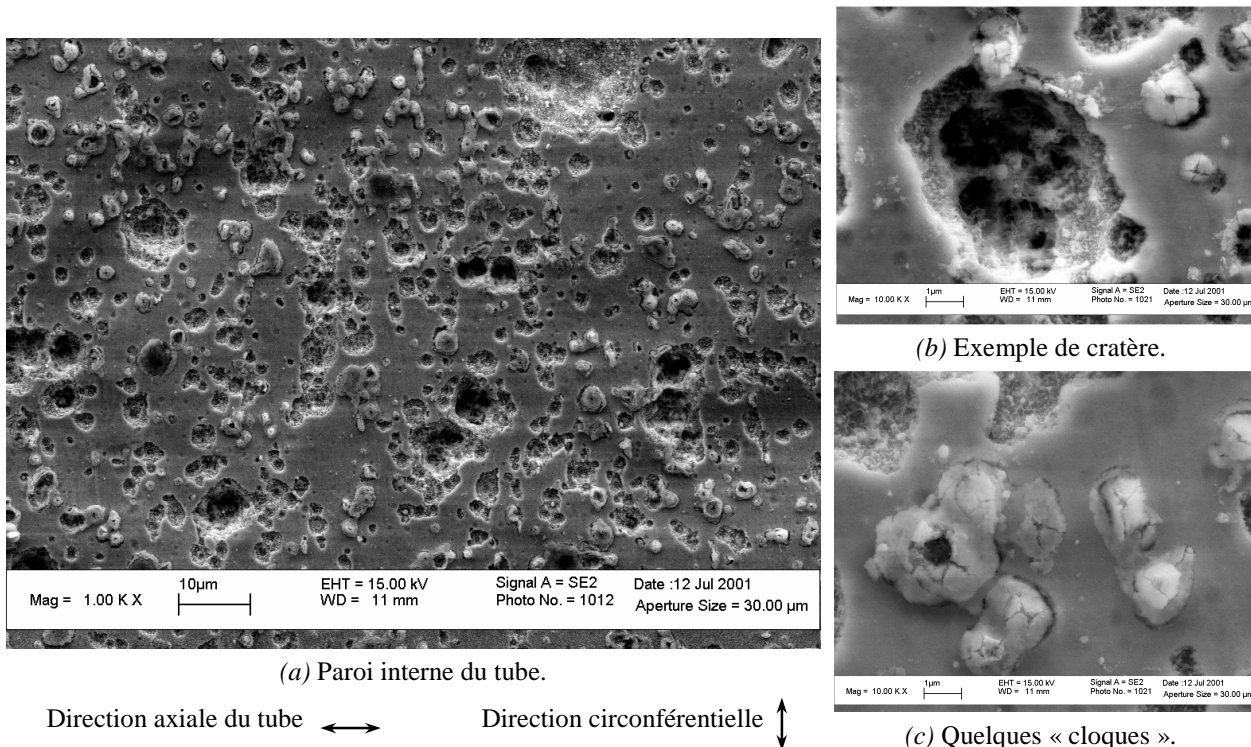


FIG. VII-6. Attaque chimique de la couche de zircone et corrosion généralisée de la surface interne d'un tube soumis à l'action de l'iode pendant 150 heures en l'absence de chargement mécanique à 350 °C.

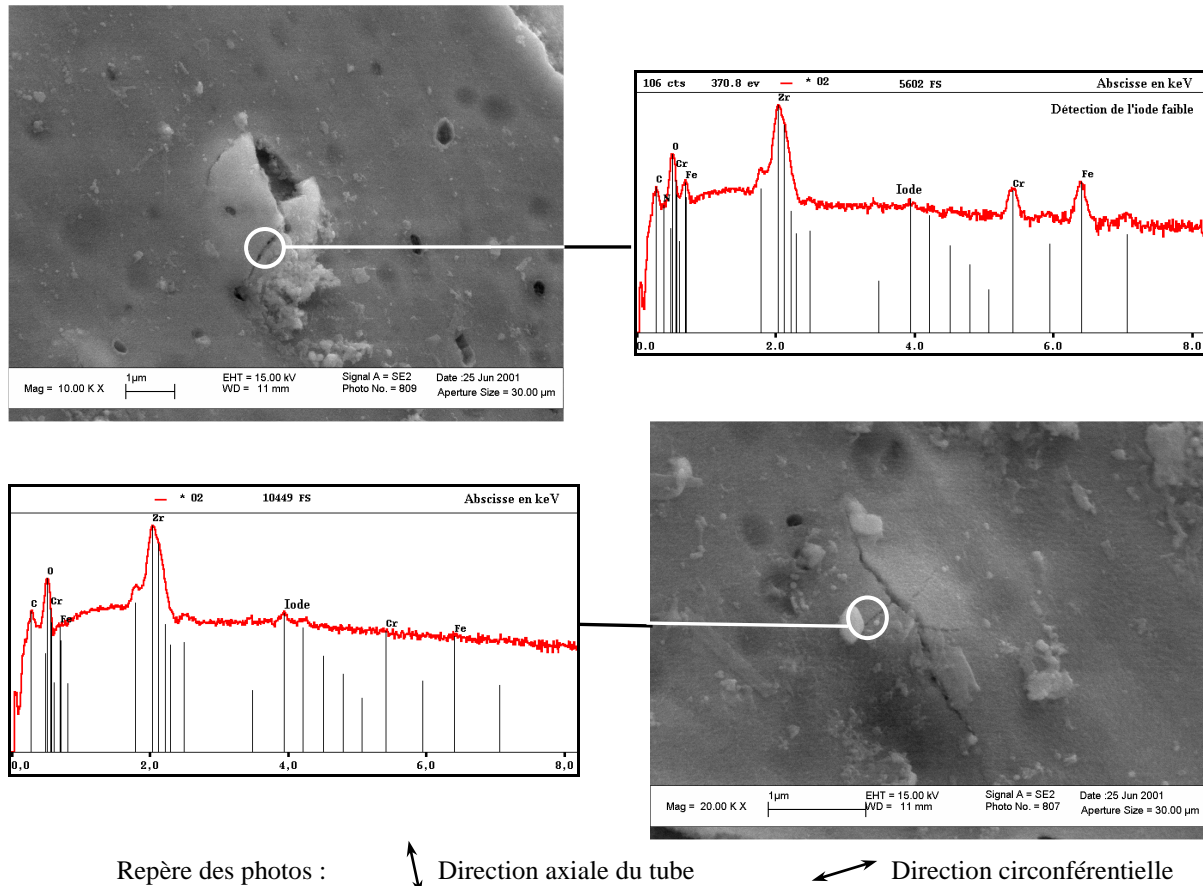
Le rôle du chargement mécanique serait *a priori* double.

- En fissurant mécaniquement la couche d'oxyde, le métal serait mis à nu puis exposé à l'attaque de l'iode. Ce mécanisme interviendrait lors de sollicitations mécaniques importantes.
- Pour de faibles chargements mécaniques, ne déformant que la couche d'oxyde sans la rompre, la mise à nu du métal n'interviendrait qu'après la traversée de la couche de zircone par l'iode pour des durées d'exposition à l'iode « importantes ». La chimie joue ici un rôle prépondérant par rapport à la mécanique dans la mise à nu du métal.
- Pour des sollicitations mécaniques intermédiaires, la possibilité de la traversée de la couche d'oxyde assistée par la contrainte (diffusion de l'iode assistée par la contrainte ou ouverture de microfissures facilitant l'accès de l'iode au métal) est à envisager.

Afin d'affiner le rôle que joue la couche d'oxyde sur l'étape d'incubation lors de nos essais conventionnels et de charge/décharge, nous avons tenté de localiser l'iode par une microanalyse par dispersion d'énergie. La figure VII-7 montre deux exemples de sites de localisation de l'iode et les analyses obtenues en regard.

L'iode que nous avons pu localiser présente des concentrations tout juste supérieures aux limites de détection de l'appareil utilisé. Seul l'iode piégé en de rares endroits a pu être détecté, sans pour autant être quantifié. Les multiples nettoyages des échantillons et la volatilité importante de certains composés iodés formés avec l'humidité ambiante sont probablement la cause de l'absence de l'iode sur les échantillons. Ceci est d'autant plus vrai pour les échantillons qui ont été aplatis. La tomographie permettrait d'avoir un seuil de détection plus faible, mais les échantillons doivent être les plus plans possibles.





Repère des photos :



Direction axiale du tube



Direction circonférentielle

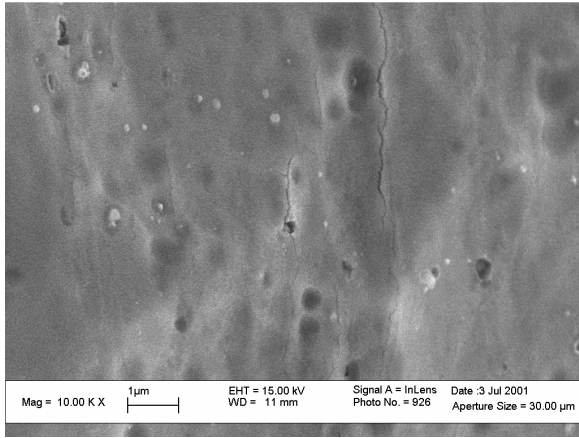
FIG. VII-7. Localisation de l'iode à l'aide de la microanalyse par dispersion d'énergie. Essai conventionnel de CSC à la contrainte circonférentielle de 350 MPa, rompu après 5,6 heures à la température de 350 °C. Zircaloy-4 détendu non irradié.

Le principal résultat de ces observations est que la présence d'iode est corrélée à la fissuration de la couche d'oxyde. Nous retrouvons également la présence d'une « cloque » au niveau de ces fissures de la couche d'oxyde lors d'essais de CSC, cloque qui n'est pas observée en milieu inerte (fig. VII-8a). Sur la figure VII-8, différentes étapes de la fissuration et du « cloquage » de la couche d'oxyde suite à l'action de l'iode sont reportées. Quelques similitudes sont à noter entre les figures VII-6 et VII-8. Au niveau d'une cloque, la couche d'oxyde se desquame petit à petit sous l'effet de la contrainte appliquée, laissant alors apparaître le cratère de corrosion s'étant formé sous cette cloque.

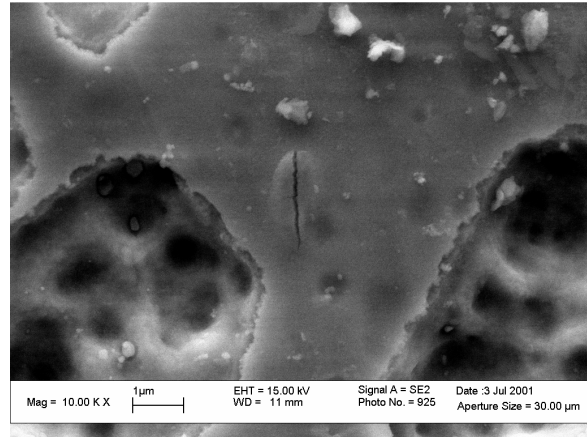
### 1.3.3 Rupture mécanique de la couche d'oxyde - Comparaison calculs / expériences

Avant de clore ce paragraphe, nous allons maintenant vérifier si nos simulations numériques conduisent à des résultats cohérents avec nos observations. En particulier, nous allons déterminer l'instant où intervient la fissuration mécanique de la couche de zircone.

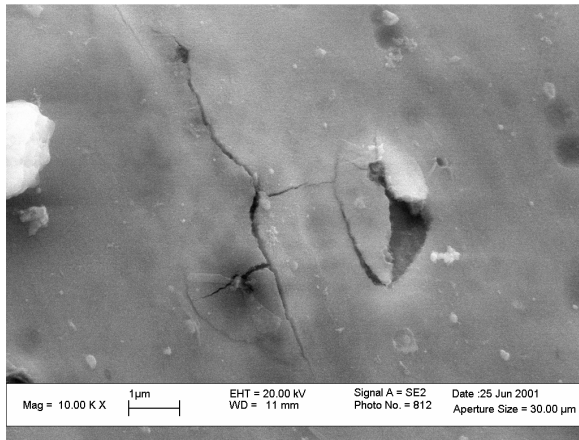
Nous avons supposé le comportement de la zircone élastique-fragile (comportement typique d'une céramique). Nous avons retenu les valeurs suivantes pour la zircone non irradiée : contrainte à rupture  $\Sigma_R(\text{ZrO}_2) \approx 2000 \text{ MPa}$ , module d'Young  $E(\text{ZrO}_2) = 200 \text{ GPa}$ , soit une déformation à rupture  $\epsilon_R(\text{ZrO}_2) \approx 0,01$ . Ces valeurs sont extrapolées pour les faibles épaisseurs à partir des quelques données disponibles dans la littérature (voir par exemple [Bérat 2001]). Elles ne constituent de fait qu'une borne supérieure de la déformation à rupture de la couche passive de zircone et ne sont utilisées que dans un but illustratif. Il faudrait plutôt considérer un domaine de rupture de la couche d'oxyde intégrant l'aspect probabiliste de la fissuration (céramique fragile).



(a) Essai en milieu inerte.



(b) Essai conventionnel de CSC,  $\Sigma_{\theta\theta} = 350$  MPa, interrompu après 3,0 heures d'essai.



(c) Essai conventionnel de CSC,  $\Sigma_{\theta\theta} = 350$  MPa, rompu après 5,6 heures d'essai.

Direction axiale du tube ↓

Direction circonférentielle ↔

FIG. VII-8. Quelques étapes de la fissuration de la couche de zircone et du phénomène de « cloquage ». Zircaloy-4 détendu non irradié à la température de 350 °C.

Pour déterminer l'instant de fissuration de la couche d'oxyde, nous avons simulé, à l'aide de notre modèle éléments finis « non fissuré » (présenté au chap. VI, § 3.1.3), les essais conventionnels ( $\Sigma_{\theta\theta} = 350$  MPa et 430 MPa) et de charge/décharge (palier haut de 60 minutes). L'évolution de la déformation circonférentielle pour ces différents essais est reportée à la figure VII-9. Il est important de noter que, quel que soit l'essai, la fissuration n'intervient pas durant la montée en pression. Pour les essais conventionnels à la contrainte circonférentielle de 350 MPa, cette fissuration a lieu après environ 5000 secondes, alors qu'elle se produit après 400 secondes environ pour les essais conventionnels et de charge/décharge, avec un palier de 60 minutes, pour la contrainte circonférentielle de 430 MPa.

De plus, la figure VII-9 montre que la fissuration de la couche d'oxyde se produit au même instant du palier haut lorsque celui-ci dure 20 ou 60 minutes, soit environ 400 secondes après le début de la montée en pression. Mais ce n'est pas le cas de l'essai de charge/décharge dont la durée du palier haut est nulle, où l'instant de fissuration est évalué à 3600 secondes.

Nous avons montré que l'observation de cratères traduit une fissuration préalable de la couche d'oxyde, la réciproque n'étant *a priori* pas valide. Toutefois, si nous supposons l'attaque chimique par l'iode très rapide une fois le métal mis à nu, nous postulons que l'absence de cratères implique que la zircone ne s'est pas encore fissurée. Par comparaison avec nos observations au MEB, nos estimations issues des calculs apparaissent comme tout à fait correctes. Pour compléter nos simulations et nos précédentes observations, il pourrait être

important de réaliser de nouveaux essais de CSC interrompus pour mieux cerner l'instant de fissuration ainsi que les premiers stades de cette dernière et de l'attaque chimique par l'iode.

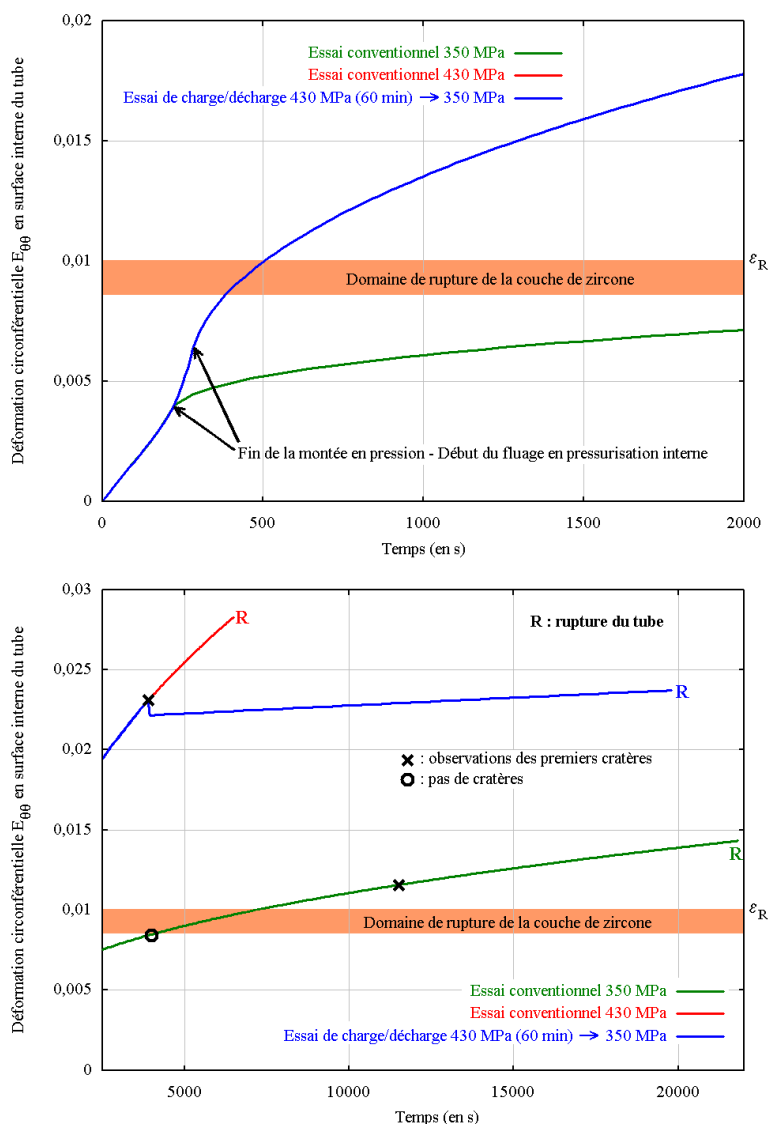


FIG. VII-9. Évolution de la déformation circonférentielle  $E_{\theta\theta}$  au cours des essais conventionnels et de charge/décharge en surface interne du tube. Estimation par simulation numérique de l'instant de fissuration de la couche de zircon. Zircaloy-4 détendu à 350 °C.

### 1.3.4 Conclusions partielles

Nous avons montré au cours de ce paragraphe que la phase d'incubation (ou du moins sa première étape) consiste en une corrosion généralisée par l'iode de la paroi interne du tube. Les sites d'attaque, caractérisés par la formation de cratères, sont corrélés à la fissuration mécanique de la couche passive de zircon, le métal ainsi mis à nu se trouvant immédiatement sous l'action agressive de l'iode. Nous pouvons estimer que la concentration en iode très élevée, ainsi que sa grande quantité disponible, expliquent les grandes dimensions de ces cratères. Les différents résultats exposés dans ce paragraphe sont en accord avec ceux disponibles dans la littérature que nous avons déjà discutés au chapitre III, § 2.3. Nous allons maintenant étudier l'amorçage proprement dit des fissures de CSC et son lien éventuel avec les phénomènes mis en évidence dans ce paragraphe.

### 1.4 LOCALISATION DES SITES D'AMORÇAGE DES DÉFAUTS DE CSC

Afin de terminer notre étude de la phase d'incubation, il nous reste maintenant à déterminer les sites d'amorçage des défauts de CSC et voir si ces derniers sont liés à la formation des cratères, faisant suite à la fissuration de la couche d'oxyde.

Les déformations faibles observées lors des essais conduits sur du Zircaloy-4 non irradié dans l'état métallurgique détendu impliquent que les défauts de CSC de faible extension axiale (inférieure à un  $\mu\text{m}$ ) sont peu ouverts et donc difficilement repérables lors des observations en MEB. Nous souhaitons localiser les sites d'amorçage sans déformer l'échantillon et donc sans introduire d'artefacts liés à la préparation de l'échantillon (exemple de l'aplatissement).

Afin de nous aider dans notre compréhension de la phase d'incubation, nous avons réalisé les mêmes observations que précédemment sur un autre alliage de zirconium dont la composition chimique et l'état métallurgique sont différents (alliage ternaire zirconium, niobium et oxygène à l'état recristallisé)<sup>3</sup>. Lors des observations au MEB de cet autre alliage, nous cherchions, dans un premier temps, à vérifier l'existence des cratères (fig. VII-10), préciser une éventuelle corrélation entre leur morphologie et celle des grains et, dans un second temps, localiser les défauts de CSC, ce qui est beaucoup plus aisé pour ce matériau du fait de sa ductilité importante.

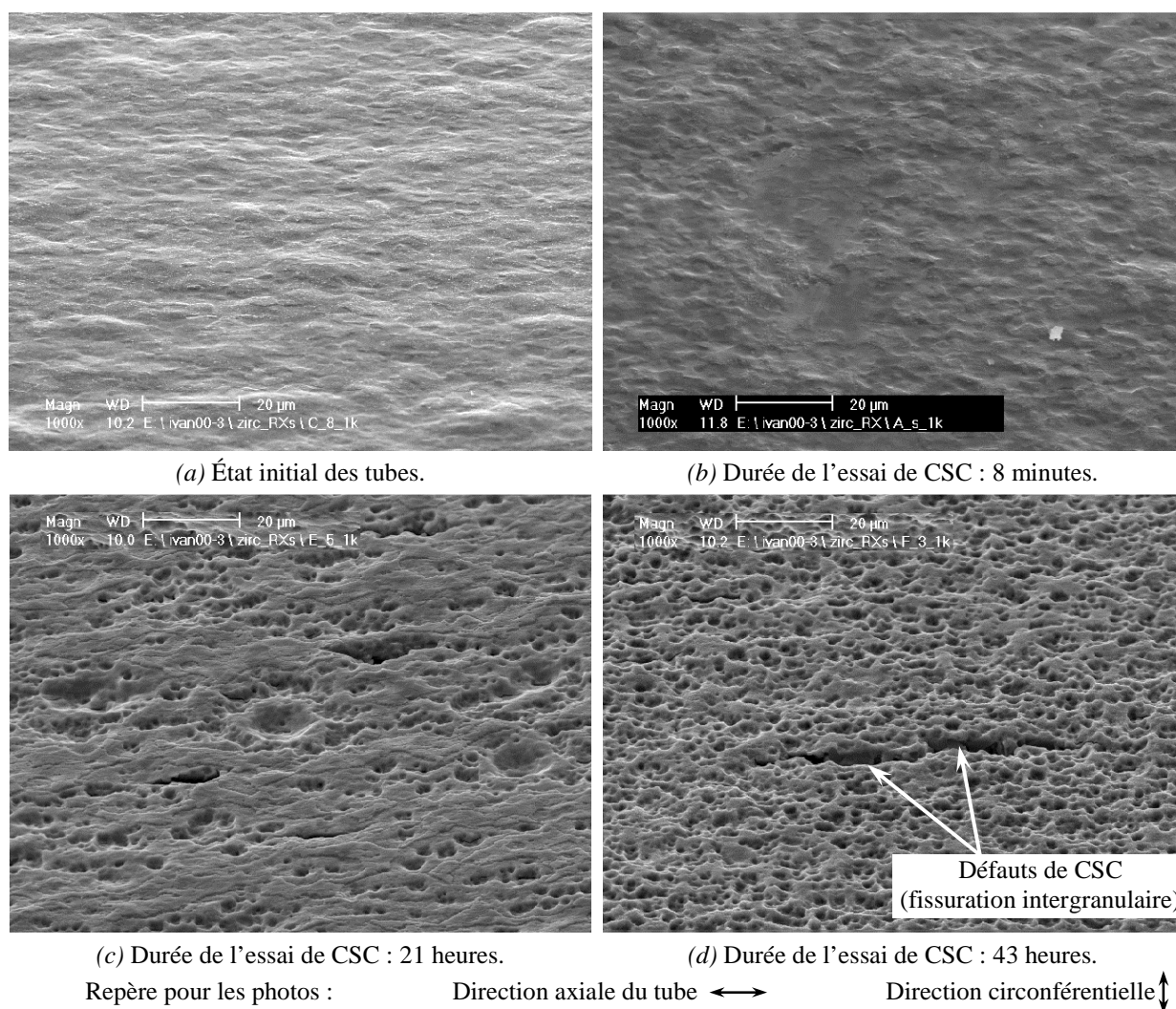


FIG. VII-10. Observation au MEB des surfaces internes d'essais de CSC conventionnels en pressurisation interne ( $\Sigma_{\theta\theta} = 320 \text{ MPa}$ ), pour différentes durées d'exposition à l'iode. Essais réalisés sur un alliage Zr-Nb-O recristallisé à la température de  $350^\circ\text{C}$ .

<sup>3</sup> Les essais sur cet alliage ont été réalisés au CEA Grenoble dans le cadre d'un contrat Framatome, hors du cadre de nos travaux. Les échantillons ont ensuite été observés au MEB à l'École Centrale Paris.



En fin d'essai, les déformations circonférentielles mesurées sont supérieures à 5 % pour cet alliage recristallisé. Les fissures de CSC, de toute taille, sont alors bien ouvertes, facilitant leurs observations au MEB. L'examen systématique des parois internes (fig. VII-10) montre que l'on retrouve les mêmes signatures que celles présentées dans les paragraphes précédents lors de l'étude du Zircaloy-4 détendu : apparition des cratères et de leur évolution avec la durée d'exposition à l'iode...

Les figures VII-11 et VII-12 montrent, pour chacun des deux alliages, quelques exemples de sites d'amorçage observés. La plus grande ductilité de l'alliage recristallisé facilite cette recherche, car nous avons pu constater une densité élevée de défauts de CSC, densité beaucoup plus faible dans le cas de l'alliage détendu. De plus, ces fissures de CSC sont fortement liées à la morphologie des grains (développement intergranulaire de ces défauts). Ceci est très visible pour l'alliage recristallisé (grains équiaxes de 2 à 3  $\mu\text{m}$ ), mais ne l'est pas pour le Zircaloy-4 détendu, ce qui s'explique probablement par la microstructure particulière de cet alliage (grains ellipsoïdaux de 20  $\mu\text{m}$  suivant l'axe des tubes). Grâce aux études conduites sur ces deux alliages, et comme nous pouvions le pressentir, les sites d'amorçage des défauts de CSC se situent toujours au fond d'un cratère, comme le montre la figure VII-11b. Ceci peut aussi être observé sur les figures VII-1d et VII-5. Il ne semble pas exister de relation entre la taille des cratères et la présence de fissures de CSC.

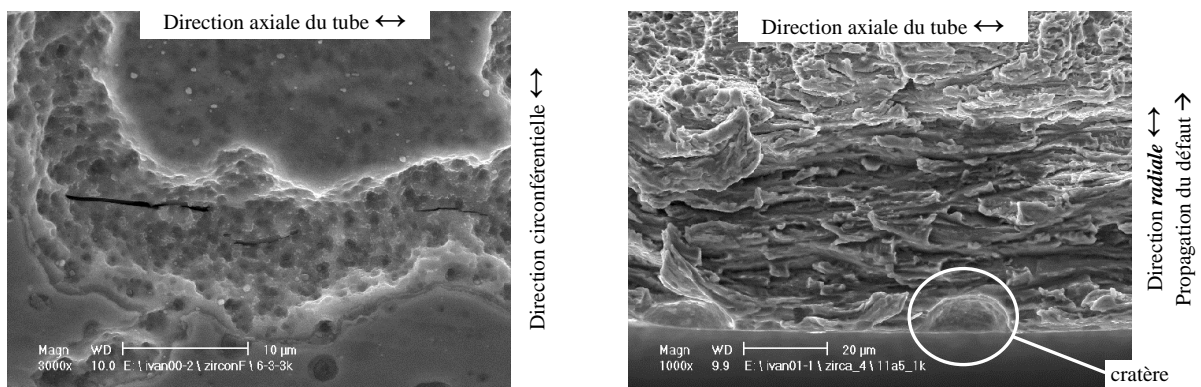
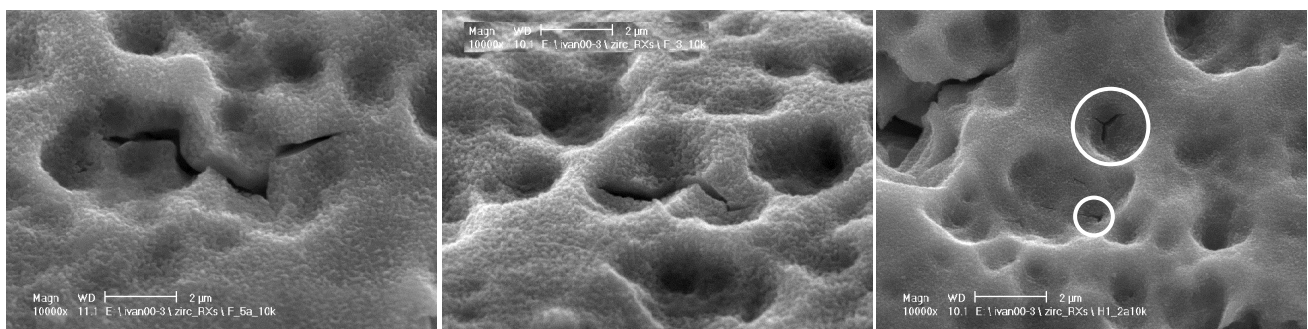


FIG. VII-11. Localisation des sites d'amorçage dans le Zircaloy-4 détendu.  
Essais conventionnels de CSC ( $\Sigma_{\theta\theta} = 350 \text{ MPa}$ ) réalisés à la température de 350 °C.



(a)  $\Sigma_{\theta\theta} = 320 \text{ MPa}$ , durée de l'essai 43,5 heures. (b)  $\Sigma_{\theta\theta} = 330 \text{ MPa}$ , essai de 4,1 h.  
Repère des photos :  $\longleftrightarrow$  Direction axiale  $\updownarrow$  Direction circonférentielle

FIG. VII-12. Localisation des sites d'amorçage dans un alliage Zr-Nb-O recristallisé.  
Essais conventionnels de CSC réalisés à la température de 350 °C.

À ce stade de nos investigations, nous pensons qu'un défaut de CSC s'amorce si les conditions mécaniques sont réunies en fond de cratère ; l'iode est en quantité suffisante et disponible pour que les conditions chimiques soient toujours vérifiées. Le cratère entraîne un effet d'entaille

mécanique, auquel on doit ajouter le rôle des différents champs mécaniques locaux régnant autour de ce cratère (la structure cristalline locale du matériau jouant ici un rôle important). Il est cependant impossible, à ce stade de l'étude, de préciser quelles doivent être ces conditions d'amorçage.

## 1.5 SYNTHÈSE

Afin de comprendre les résultats surprenants obtenus lors de nos campagnes d'essais conventionnels et de charge/décharge décrites au chapitre précédent, nous avons entrepris un examen systématique au MEB des surfaces internes de ces essais. Ceci avait pour but de mieux connaître la loi de propagation d'un défaut de CSC. En fait, nous avons mis en évidence une phase d'incubation qui constitue une part importante de la durée de vie des essais. Nous avons pu corrélérer cette phase avec la fissuration mécanique de la couche passive<sup>4</sup> de zircone. Le métal ainsi mis à nu est soumis très rapidement à l'attaque agressive de l'iode. De plus, nous avons montré que les vitesses de propagation intergranulaire auraient été très vraisemblablement sous-estimées et seraient plus proches des vitesses mesurées pour la phase transgranulaire. Bien que nous ayons pu localiser les sites d'amorçage en CSC, dans la continuité de la phase d'incubation, les conditions mécaniques qui gouvernent l'amorçage des fissures restent à préciser.

Lors des essais de pressurisation interne, les durées de vie observées incluent une phase d'incubation qui perturbe l'étude du phénomène proprement dit de corrosion sous contrainte des alliages de zirconium. Il est donc important de supprimer cette phase pour étudier la CSC seule. Les quelques études entreprises sur l'alliage Zr-Nb-O recristallisé non irradié montrent que la phase d'incubation ne résulte pas d'un comportement particulier du lot étudié (Zircaloy-4 détendu non irradié). En complément du programme décrit au chapitre VI, § 2.3.2, nous avons établi un programme similaire d'observations au MEB des surfaces internes du Zircaloy-4 détendu irradié deux cycles en REP. Des contraintes techniques ne nous ont, malheureusement, pas permis de réaliser les essais de CSC interrompus (deux tronçons de gaines irradiées restaient disponibles) et d'effectuer les observations au MEB. Toutefois, nous pouvons penser que les conclusions seraient les mêmes. Il reste le problème de la détermination des paramètres mécaniques de la couche de zircone irradiée ( $\epsilon_R$ ) et également de son état suite à l'irradiation en réacteur.

La définition de l'essai de charge/décharge sous-entendait que seuls les mécanismes de corrosion sous contrainte étaient impliqués au cours de l'essai. Les résultats de ce paragraphe nous montrent que tel n'est pas le cas, la fissuration de la couche d'oxyde jouant un rôle prépondérant. Il est à noter que nous parlerons, par la suite, indifféremment d'essai de charge/décharge ou d'essai avec une surcharge mécanique, en précisant la durée de maintien au palier haut, à la contrainte « haute ».

## 2 INFLUENCE DU CHARGEMENT MÉCANIQUE SUR LA FISSURATION PAR CSC

Nous allons maintenant poursuivre notre étude de l'influence du chargement mécanique sur la fissuration par CSC. Il est important de pouvoir étudier les seuls mécanismes de la CSC et d'éliminer la phase d'incubation vue au paragraphe précédent. Plusieurs possibilités, adaptées au dispositif expérimental que nous utilisons, s'offrent à nous. Nous en avons, pour l'instant, dénombré trois et nous présenterons, dans la suite, les résultats associés aux deux premières.

---

<sup>4</sup> Nous préférons parler de couche d'oxyde passive et éviter l'expression de « couche protectrice » utilisée par certains auteurs, puisque nous avons vu que cette couche était perméable à l'iode.

- La rupture mécanique de la couche d'oxyde doit intervenir le plus rapidement possible. Ceci peut être réalisé sur éprouvettes saines en imposant une sollicitation en pressurisation interne importante. La réalisation de ces essais nous permettra alors, si cela est possible, d'accéder à la durée entre la fissuration de la couche d'oxyde et l'amorçage d'une fissure. L'inconvénient est que la définition des trajets de chargement possibles est restreinte, le passage à forte contrainte étant une étape obligatoire.
- La réalisation d'essais sur éprouvettes préfissurées permet *a priori* d'avoir en pointe de fissure une rupture mécanique de la couche d'oxyde et une propagation en CSC immédiates.
- La dernière solution, que nous n'avons pas étudiée, serait d'utiliser le phénomène d'attaque chimique de la couche de zircone, vue précédemment au § 1.3.2. Pour cela, il faudrait déterminer quelle est la durée minimale correspondant au début la mise à nu du matériau (formation des premiers cratères) suite à cette attaque chimique en l'absence de contraintes appliquées. L'essai de CSC (application du chargement mécanique) débiterait seulement à l'issue de cette étape de corrosion généralisée. Quel que soit l'essai, l'état initial, *a priori* propice à la CSC, serait identique. Cette méthode pourrait être intéressante à appliquer aux matériaux irradiés, ce qui permettrait de réaliser des essais dans des conditions proches de celles régnant en réacteur. La reproductibilité de cette procédure expérimentale reste cependant à démontrer.

## 2.1 NOUVEAU PROGRAMME D'ESSAIS DE CSC À CONTRAINTE $\Sigma_H$ ÉLEVÉE

Nous avons réalisé une nouvelle campagne d'essais de CSC de charge/décharge, conduits à rupture ou interrompus, ainsi que les observations au MEB associées.

### *Dimensionnement de l'essai à forte contrainte - Calculs préliminaires*

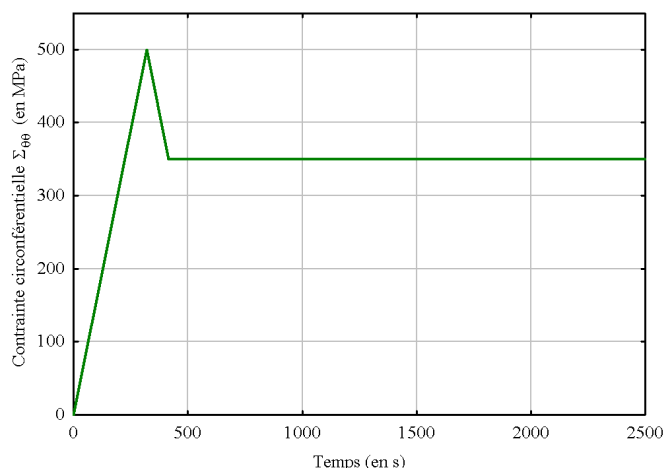
Nous devons choisir la contrainte « haute »  $\Sigma_H$  la plus élevée possible. Mais les durées de vie des essais conventionnels réalisés à cette contrainte ne doivent pas être trop faibles, afin de ne pas risquer la rupture de l'éprouvette lors de la redescente à la contrainte « basse »  $\Sigma_B$ . Cette contrainte  $\Sigma_B$  est toujours égale à 350 MPa. Au vu des résultats expérimentaux précédemment présentés au chapitre VI, nous avons retenu la valeur de 500 MPa pour la contrainte  $\Sigma_H$ , valeur proche de la contrainte circonférentielle d'éclatement des tubes en pressurisation interne. La durée du palier haut est choisie nulle. Par la suite, nous désignerons cet essai de CSC comme l'essai à forte contrainte.

À l'aide du modèle éléments finis non fissuré, nous avons simulé cet essai à forte contrainte, afin de déterminer l'instant de fissuration de la couche d'oxyde. Les résultats de ces simulations sont présentés à la figure VII-13. Cette figure montre qu'en choisissant une contrainte haute de 500 MPa, la fissuration de la couche d'oxyde intervient lors de la montée.

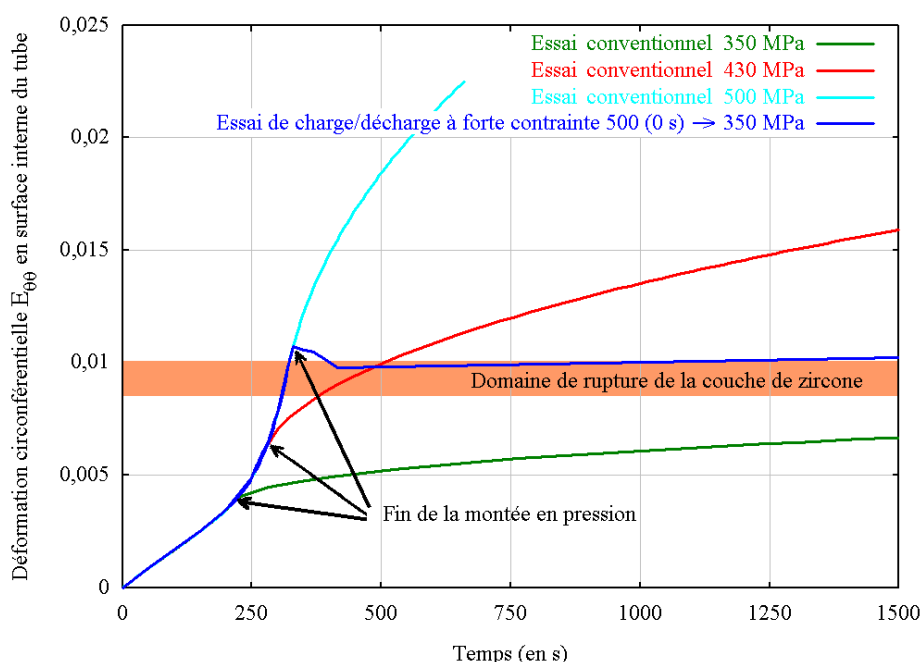
### *Présentation des résultats expérimentaux*

Le tableau VII-3 présente l'ensemble de la campagne d'essais réalisés à forte contrainte. Les essais interrompus vont nous permettre d'examiner au MEB l'évolution de la surface interne, afin de compléter les observations entreprises au paragraphe 1.

Nous constatons que les durées de vie des nouveaux essais à forte contrainte sont très proches de celles obtenues lors de la précédente campagne d'essais réalisés sur ce lot (cf. tableau VI-3). La question est de savoir s'il y a, lors de la surcharge mécanique, amorçage de défauts de CSC, dont la propagation serait bloquée par la redescente à contrainte « basse »  $\Sigma_B$ .



(a) Définition de l'essai.



(b) Résultats des simulations numériques.

FIG. VII-13. Définition de l'essai de CSC à forte contrainte ( $\Sigma_H = 500$  MPa,  $\Sigma_B = 350$  MPa, sans maintien à la contrainte  $\Sigma_H$ ). Détermination de l'instant de fissuration de la couche passive de zircon par simulation numérique. Zircaloy-4 détendu non irradié à la température de 350 °C.

#### Examens au MEB des parois internes des essais à forte contrainte

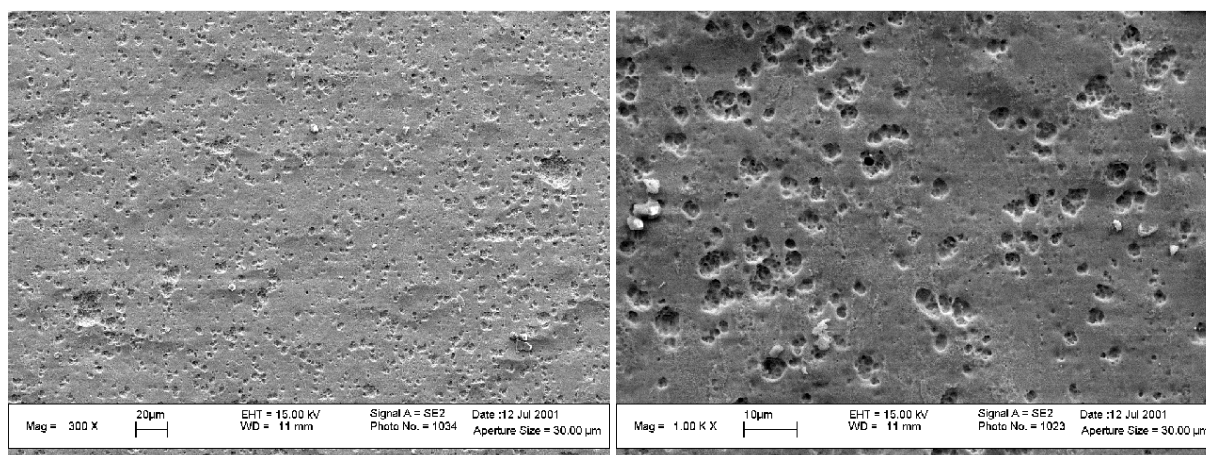
Afin de compléter notre analyse, il est indispensable d'observer l'évolution de la surface interne des tubes au cours de l'essai. Les essais interrompus vous nous permettre, d'une part, de vérifier s'il y a bien eu fissuration de la couche d'oxyde lors de la montée et, d'autre part, d'estimer l'instant d'amorçage des défauts, si nous en observons.

La figure VII-14 montre l'évolution de la paroi interne des tubes au cours de l'essai de CSC à forte contrainte. La présence des cratères atteste qu'il y a bien eu fissuration de la couche d'oxyde lors de la montée en pression, comme prévu par les simulations numériques. Contrairement à ce que nous avons déjà observé, nous n'avons pas ici mis en évidence de cloques. Ceci s'explique probablement par la sollicitation appliquée importante, la couche de zircon fissurée au niveau des cratères se détachant de la paroi du tube sous l'effet de la contrainte mécanique importante.

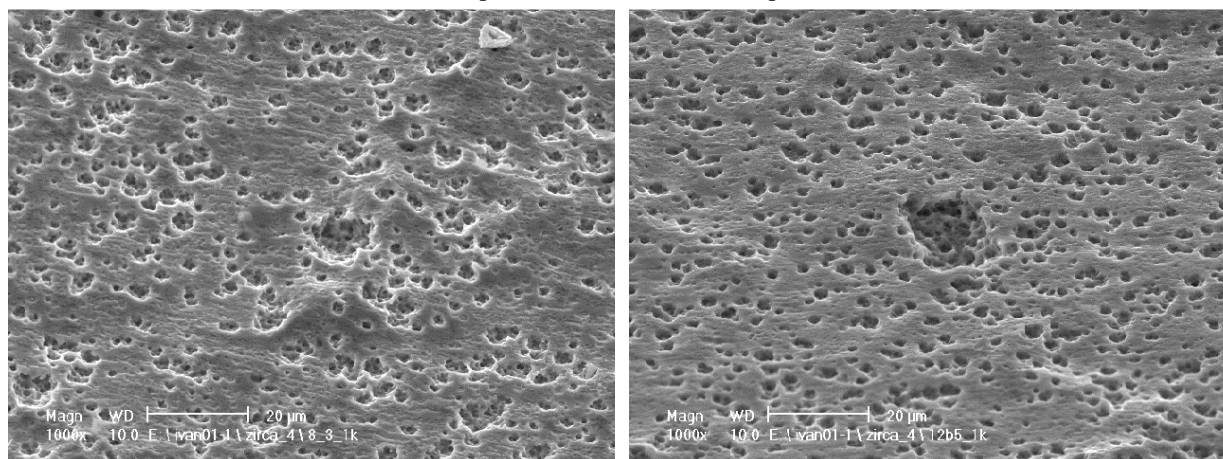
TABLEAU VII-3. Description de la campagne d'essais de pressurisation interne à forte contrainte réalisés sur Zircaloy-4 détendu non irradié (« lot C ») à la température de 350 °C.

<i>Essais conventionnels</i>					
<i>Milieu</i>	$\Sigma_{\theta\theta}$ (en MPa)	<i>Durée</i> de l'essai	<i>Déformation</i> $E_{\theta\theta}^{\text{vp}}$	<i>Vitesse moyenne</i> $\dot{E}_{\theta\theta}^{\text{vp}}$ (en $s^{-1}$ )	<i>Remarques</i>
Inerte	540	350 s	-	-	Essai d'éclatement
Iode	500	0,24 h	-	-	Tube éclaté en CSC
	500	270 s	0,0024	$9,0 \cdot 10^{-6}$	Essai interrompu à la fin de la montée en pression

<i>Essais de CSC à forte contrainte</i> ( $\approx 60$ mg d'iode) $\Sigma_H = 500$ MPa, $\Sigma_B = 350$ MPa, sans palier « haut »		
<i>Durée de l'essai</i> (en h)	<i>Déformation</i> $E_{\theta\theta}^{vp}$	<i>Remarques</i>
3,4	0,0090	Fissure CSC débouchante
4,9	0,0092	idem
5,9	0,0096	idem
0,2	0,0070	Essai interrompu après 10 min de maintien à la contrainte $\Sigma_H$



(a) Essai de CSC interrompu à la fin de la montée en pression à  $\Sigma_H = 500$  MPa.



(b) Essai de CSC interrompu après 10 minutes de maintien à la contrainte « basse »  $\Sigma_B = 350$  MPa.

(c) Essai de CSC conduit à rupture (3,4 heures).

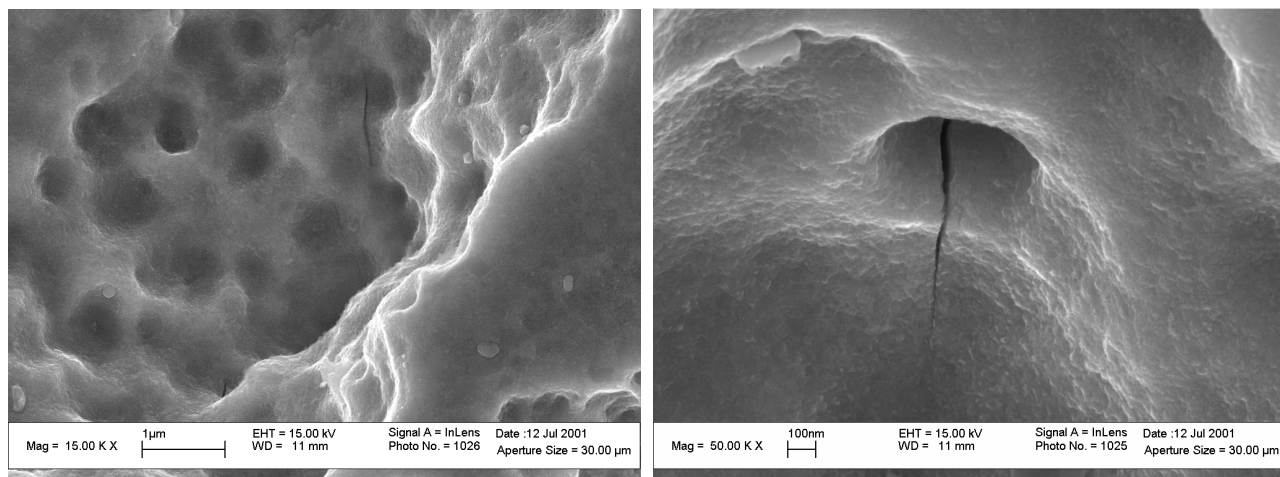
Repère des photos :

Direction axiale  $\longleftrightarrow$ 

Direction circonférentielle  $\updownarrow$

FIG. VII-14. *Observations au MEB de la paroi interne des tubes au cours de l'essai de CSC à forte contrainte ( $\Sigma_H = 500$  MPa,  $\Sigma_B = 350$  MPa), sans palier « haut » (durée nulle) pour différents instants. Zircaloy-4 non irradié à l'état détendu pour la température de 350 °C.*

Nous avons alors poursuivi nos investigations en tentant de localiser quelques sites d'amorçage de fissures de CSC. Nous nous sommes limité à observer le fond des cratères de corrosion. Cependant, la recherche des fissures, dont l'extension axiale est inférieure à  $1\ \mu\text{m}$ , nous a obligés à travailler à fort grossissement et à examiner une surface importante de l'échantillon, car la densité de fissures de CSC pour le Zircaloy-4 détendu non irradié est très faible. Les échantillons observés ont été découpés dans les tubes déformés lors de l'essai, mais ils n'ont pas été aplatis afin d'éviter tout artefact. Quelques-uns des rares défauts de CSC, qui ont été observés en fond de cratère, sont présentés à la figure VII-15.

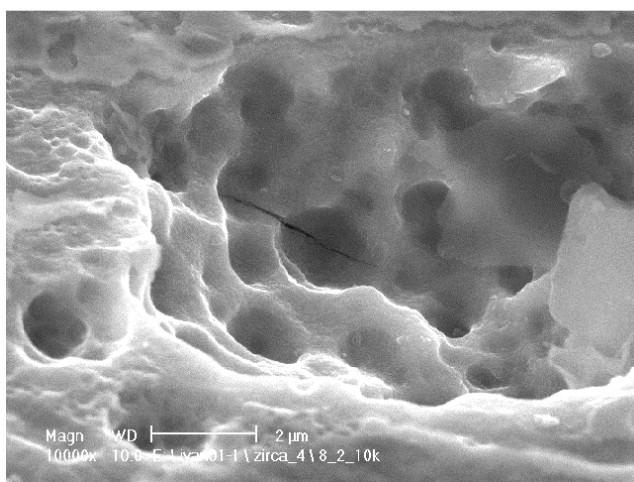


(a) Essai interrompu à la fin de la montée en pression à  $\Sigma_H = 500\ \text{MPa}$ .

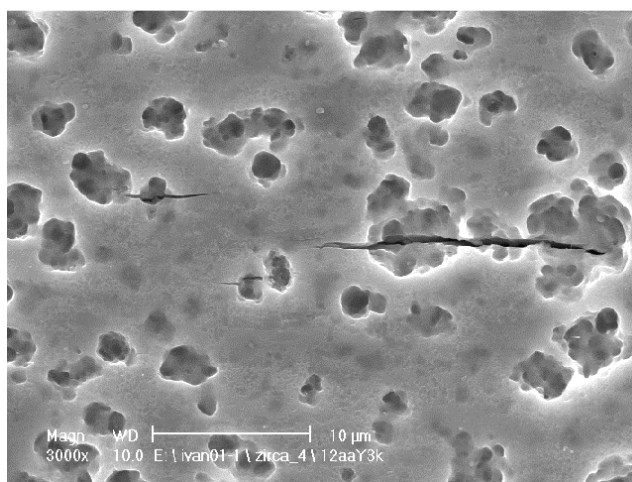
Repère des photos (a) :

Direction axiale  $\updownarrow$

Direction circonférentielle  $\longleftrightarrow$



(b) Essai interrompu après 10 minutes de maintien à la contrainte « basse »  $\Sigma_B = 350\ \text{MPa}$ .



(c) Essai conduit à rupture (3,4 heures)

Repère des photos (b) et (c) :

Direction axiale  $\longleftrightarrow$

Direction circonférentielle  $\updownarrow$

FIG. VII-15. Localisation au MEB de quelques sites d'amorçage de défauts de CSC au cours de l'essai de charge/décharge à forte contrainte ( $\Sigma_H = 500\ \text{MPa}$ ,  $\Sigma_B = 350\ \text{MPa}$ , palier haut de durée nulle) pour différents instants. Zircaloy-4 détendu non irradié à  $350\ ^\circ\text{C}$ .

### Analyse des résultats obtenus

Le résultat essentiel de ces essais à forte contrainte est que l'amorçage des fissures de CSC se produit bien lors de la surcharge mécanique. Notamment, les premiers défauts s'amorcent dès la fissuration de la couche d'oxyde, avant que la contrainte de  $500\ \text{MPa}$  ne soit atteinte. Ceci est bien conforme à nos attentes.



Dans ces essais à forte contrainte, la durée de vie correspond à la seule phase de propagation des fissures de CSC jusqu'à la rupture du tube (environ 5 heures). Par contre, dans les essais conventionnels à la contrainte de 350 MPa, la phase d'incubation durait au minimum 3 heures et les premiers défauts étaient observés après 4,5 heures d'essai, la phase de propagation étant estimée approximativement à deux heures. La question de l'effet de la redescente à la contrainte basse lors de l'essai à forte contrainte sur les quelques défauts amorcés se pose. En effet, on peut se demander si la propagation des fissures de CSC, créées lors de la surcharge mécanique, n'a pas été bloquée ou seulement ralentie lors de la décharge. Ce phénomène de fermeture de fissures a déjà été observé dans d'autres matériaux (voir par exemple [Pommier et al. 1999, Pommier 2001]). Rappelons que c'était le but recherché lorsque nous avons défini l'essai de charge/décharge au chapitre VI, mais cela supposait aussi l'existence de fissures lors des essais conventionnels, ce qui n'est pas le cas.

### Synthèse et conclusions

La figure VII-16 trace les évolutions de la vitesse de déformation viscoplastique circonférentielle, obtenues par simulations numériques à l'aide du modèle éléments finis non fissuré, au cours des différents essais de CSC étudiés. Ce diagramme montre l'effet de la surcharge mécanique sur la vitesse de déformation viscoplastique, qui diminue fortement lors des baisses de pression. Nous avons également reporté sur cette figure VII-16 l'ensemble des observations obtenues lors des différentes campagnes d'essais de CSC : fissuration de la couche de zircone et détection de l'amorçage de fissures de CSC.

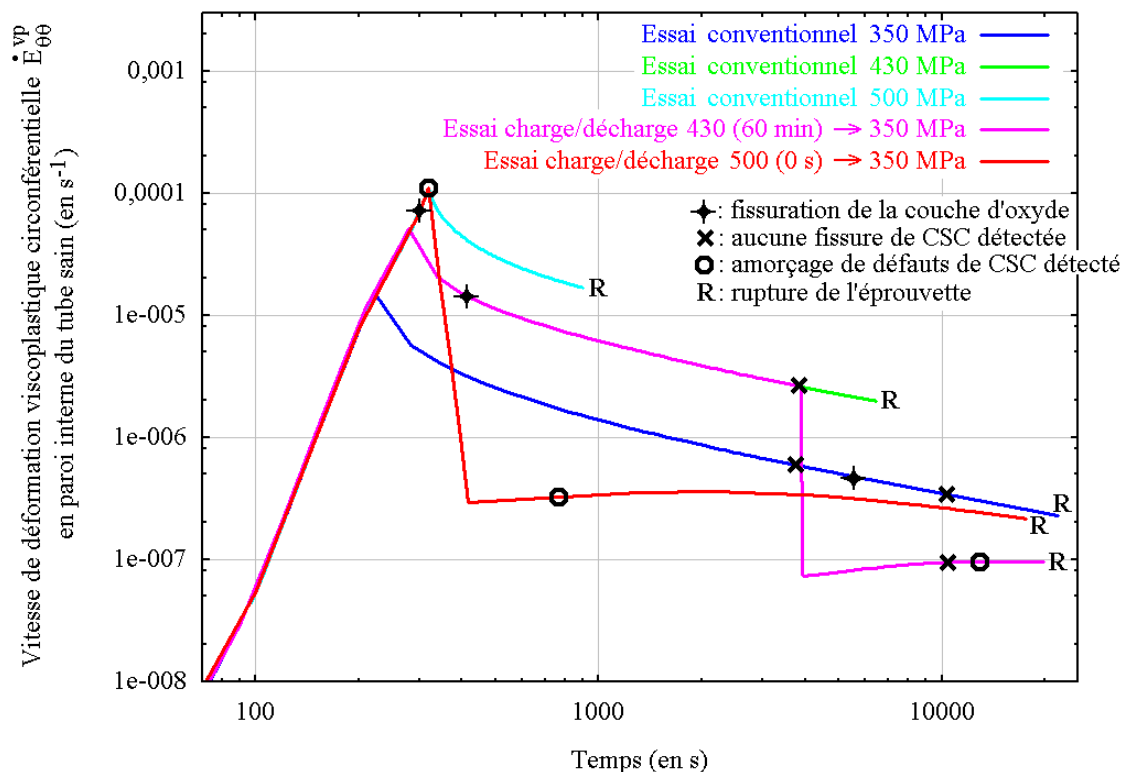


FIG. VII-16. Synthèse des observations expérimentales obtenues pour l'ensemble des essais de CSC réalisés sur des tubes en Zircaloy-4 non irradié à l'état détendu pour la température de 350 °C. Simulations par éléments finis sur tubes sains.

Nous avons pu montrer avec l'essai de CSC à forte contrainte que l'amorçage des défauts de CSC peut être très rapide une fois la couche d'oxyde fissurée. Cependant, les conditions mécaniques qui gouvernent l'amorçage puis la propagation de fissures de CSC restent à établir.

Pour cela, il apparaît indispensable dans nos modèles par éléments finis :

1. De prendre en compte la présence des cratères pour simuler les effets mécaniques régnant au fond de ces cratères. De simuler éventuellement leur formation.
2. De modéliser la présence de défauts de petites tailles à l'échelle cristalline du matériau. Ceci nous permettra, notamment, de vérifier la fermeture partielle des fissures suite à la redescende en contrainte lors de l'essai à forte contrainte.

Cependant, ces calculs nécessitent de connaître plus précisément la loi de formation des cratères, d'origine chimique, et la loi de propagation des fissures de CSC.

## 2.2 ESSAIS DE CSC SUR TUBES PRÉFISSURÉS

Nous avons vu que les comparaisons entre les essais de CSC sur tubes sains restent très difficiles du fait de l'existence de la phase d'incubation. En effet, lors des essais de CSC, réalisé jusqu'à présent, il est difficile d'étudier l'influence de la sollicitation mécanique sur les seuls mécanismes de CSC, car il existe un couplage, parfois prépondérant, entre le chargement mécanique appliqué et la fissuration de la couche de zircone.

Afin de comprendre l'influence du chargement mécanique sur la CSC, il est important de pouvoir comparer les résultats expérimentaux pour lesquels les conditions requises pour la CSC sont identiques pour tous les essais. Il faut donc rompre la couche d'oxyde le plus rapidement possible au cours de l'essai. De plus, il est important de réaliser les variations du chargement mécanique sur des fissures de taille importante afin d'obtenir en pointe de fissure des effets marqués. Ceci nous oriente tout naturellement vers l'utilisation d'éprouvettes préfiissurées. La préfiissure joue le rôle de concentrateur de champs mécaniques conduisant à une rupture très rapide de la couche d'oxyde en pointe de fissure et la durée d'amorçage est *a priori* nulle dans ce cas. Par contre, il est important de bien maîtriser la taille de cette préfiissure.

### *Étape préliminaire : réalisation des éprouvettes préfiissurées*

La réalisation d'essais de pressurisation interne sur tubes préfiissurés n'est pas une idée nouvelle et a été couramment utilisée dans la littérature pour étudier la phase de propagation transgranulaire des fissures de CSC dans les alliages de zirconium. Les méthodes utilisées pour générer ce défaut initial en surface interne du tube sont multiples : par exemple, entaille mécanique [Jones et al. 1978], par fatigue mécanique [Bibilashvili et al. 1995]... La méthode que nous avons utilisée a été développée au CEA Grenoble et permet d'obtenir des préfiissures par fatigue-corrosion en méthanol iodé à la température ambiante. Les préfiissures sont des défauts de CSC. Le fait de travailler en fatigue-corrosion permet de minimiser les contraintes et les déformations subies par le tube lors de la préfiissuration et, notamment, de limiter les déformations plastiques en pointe de fissure. La figure VII-17 montre le dispositif expérimental, ainsi que l'état de contrainte régnant dans la section du tube au droit du point d'application de la force. On trouvera de plus amples détails sur la réalisation de cet essai et le protocole expérimental associé dans [Rouillon et al. 2002].

Avant de réaliser les préfiissures, il est important de déterminer, pour le lot étudié, la loi donnant la profondeur de la préfiissure réalisée en fonction du nombre de cycles<sup>5</sup>. La détermination de la taille de la préfiissure est effectuée par observation au MEB des faciès obtenus. Ceci nécessite de réaliser un examen destructif d'une bague contenant la préfiissure, découpée dans le tronçon du tube. Cette bague est ensuite rompue au niveau de la préfiissure, par traction monotone. Cette méthode a été utilisée pour des préfiissures de profondeur supérieure à 200  $\mu\text{m}$ , car la rupture

<sup>5</sup> Il est très important de noter que cette loi est à effectuer pour chaque nouveau lot, même s'il s'agit d'une nuance déjà étudiée (en ce qui nous concerne le Zircaloy-4 détendu non irradié). Il faut éviter toute extrapolation à partir des courbes obtenues lors d'études antérieures sur le même alliage.



ductile du ligament au niveau de la préfissure s'accompagne d'une faible déformation du ligament. Cependant, pour de petites tailles de préfissures, telles que celles que nous souhaitons réaliser, cette méthode est peu adaptée, car elle risque de fausser la mesure au MEB en surestimant la taille de la préfissure. Nous avons alors développé une méthode simple et rapide à mettre en œuvre. Cette méthode consiste à rompre, par poinçonnement dans l'azote liquide, la demi-bague contenant la préfissure ; le poinçon est placé au droit de la préfissure puis frappé d'un coup sec. La rupture du ligament est ductile, même à ces basses températures, mais se fait sans déformation du ligament, ce qui permet d'observer aisément la préfissure. Nous avons pu ainsi déterminer des préfissures dont la taille était de  $70\text{ }\mu\text{m}$  environ. Il est également important de noter qu'en réalité nous n'avons pas une seule préfissure, mais plusieurs petites fissures sur la face interne du tube. Certaines de ces préfissures coalescent ensuite pour former un seul défaut de taille importante. Ce phénomène de multifissuration, classique en fatigue, est gênant si l'on souhaite de petites tailles de défauts (profondeur inférieure à  $50\text{ }\mu\text{m}$ ). De plus, une forte dispersion est observée pour les préfissures courtes. Pour le lot étudié, 25 essais de préfissuration ont été réalisés puis observés au MEB afin de déterminer la courbe d'« étalonnage » donnant la taille de la préfissure en fonction du nombre de cycles et la dispersion associée.

Pour éviter les différents problèmes que nous venons de mettre en avant, nous avons choisi une profondeur de  $100\text{ }\mu\text{m}$  pour les tubes préfissurés, la dispersion étant estimée à  $10\text{ }\mu\text{m}$ . En regard de l'épaisseur du tube, cette taille de préfissure est importante.

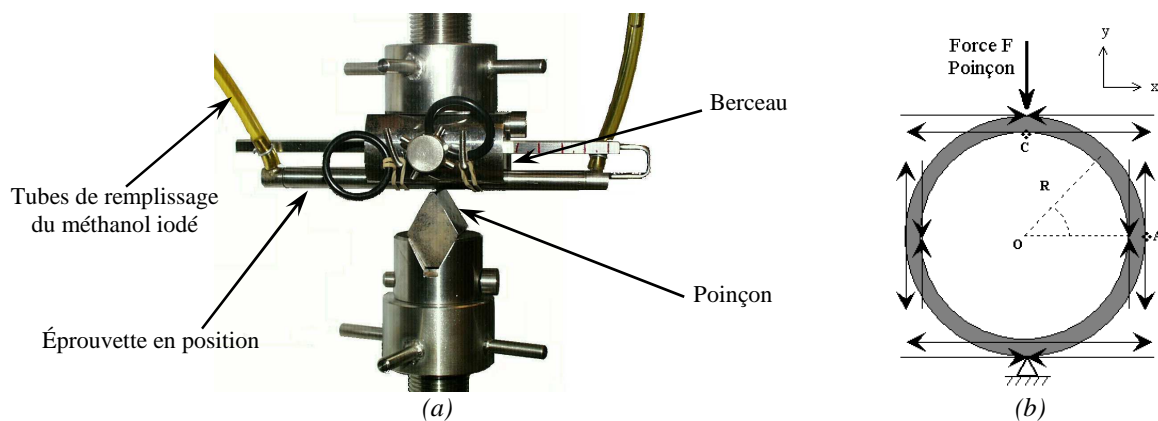


FIG. VII-17. (a) Dispositif expérimental de préfissuration par fatigue corrosion en méthanol iodé à  $20\text{ }^{\circ}\text{C}$  de tubes en alliages de zirconium non irradiés. (b) Champ de contrainte régnant au droit d'application du poinçon. Le berceau du dispositif a pour but de minimiser les efforts sur la partie inférieure du tube et d'empêcher la fissuration dans cette zone, la préfissure se créant au point C (voir [Rouillon et al. 2002]).

#### Résultats des essais de CSC réalisés sur tubes préfissurés

Nous avons réalisé sur ces éprouvettes préfissurées, d'une part, des essais conventionnels servant de référence et, d'autre part, des essais de charge/décharge. Compte tenu de la taille importante de la préfissure, nous avons opté pour un palier haut de durée nulle, afin d'éviter toute rupture lors de la décharge à la contrainte basse. Rappelons que les variations de pression s'effectuent toujours à la vitesse constante de  $2\text{ bar.s}^{-1}$ . Le tableau VII-4 recense l'ensemble des résultats obtenus lors de cette campagne d'essais réalisés sur éprouvettes préfissurées. Dans ce tableau, les contraintes circonférentielles reportées correspondent à celles régnant dans un tube sain, sans tenir compte de la présence de la préfissure, les notations restant les mêmes que celles utilisées auparavant. Nous n'avons pas pu multiplier les essais et étudier la reproductibilité pour ces essais préfissurés, car nous ne disposions plus de tubes en Zircaloy-4 détendu du lot C.

TABLEAU VII-4. Campagne d'essais de CSC réalisés sur tubes préfissurés en Zircaloy-4 détendu (lot C) à la température de 350 °C. La taille de la préfissure est estimée à  $100 \pm 10 \mu\text{m}$ .

Essais conventionnels		Essais de charge/décharge sans palier haut		
$\Sigma_{00}$ (en MPa)	Durée de vie	Contrainte haute $\Sigma_H$ (en MPa)	Contrainte basse $\Sigma_B$ (en MPa)	Durée de vie
280	4 h 20 min	430	390	40 min
360 *	48 min	430	350	31 min
390	43 min	430	350	23 min
430	15 min	390	350	36 min

\* : la contrainte souhaitée était de 350 MPa.

Toutes les fissures ayant conduit à la rupture du tube se sont propagées à partir de la préfissure, ce qui constitue un résultat très intéressant. Les durées de vie des essais conventionnels sur tubes préfissurés sont beaucoup plus faibles que celles obtenues sur tubes sains pour les mêmes sollicitations mécaniques. Ceci confirme ce que nous avons déjà noté, c'est-à-dire que la propagation par CSC ne constitue qu'une faible part de la durée de vie des essais de CSC sur tubes sains, du fait de la fissuration préalable de la couche d'oxyde.

Lors des essais conventionnels sur tubes sains, les durées de propagation en CSC ont été évaluées respectivement à deux heures pour une contrainte circonférentielle imposée de 350 MPa et inférieure à une heure pour 430 MPa. Ces estimations, qui constituent une borne supérieure de la durée de propagation par CSC, restent à préciser mais sont compatibles avec les durées de vie observées lors des essais sur tubes préfissurés pour les mêmes sollicitations mécaniques.

Sur les quelques essais réalisés, il n'y a pas d'effet notable de la surcharge mécanique sur la durée de vie des tubes préfissurés. Mais, vu le faible nombre d'essais réalisés, il convient d'être prudent et de ne pas conclure trop rapidement sur cette absence d'effet de la surcharge. De plus, il subsiste des doutes sur la taille exacte de la préfissure. En effet, l'observation des faciès de rupture ne nous a pas permis de déterminer les dimensions des préfissures et cela pour plusieurs raisons. Soit les faciès de rupture étaient entièrement oxydés suite à la rupture du tube, les rendant difficilement exploitables, soit ces derniers n'étaient pas oxydés, mais il n'était pas possible de distinguer la propagation en CSC lors de l'essai de la préfissure. Nous comptons en fait sur une oxydation préalable et « légère » (par l'oxygène résiduel) des faciès de la préfissure lors de la montée en température et/ou lors des premiers instants de la montée en pression. Ceci nous aurait alors permis de corréler la dispersion des durées de vie des essais de charge/décharge avec des tailles de préfissures différentes.

#### Modélisation des essais de CSC sur tubes préfissurés

Nous allons maintenant aborder la modélisation par éléments finis des différents essais sur tubes préfissurés. Les simulations ont été conduites à l'aide du modèle décrit au chapitre VI dans les paragraphes 3.1 et 3.2. Une préfissure de  $100 \mu\text{m}$  a été modélisée pour tous les essais. Contrairement aux calculs présentés au chapitre VI, nous n'avons pas simulé la propagation de ce défaut, par manque d'informations sur la loi de fissuration.

Dans un premier temps, nous avons étudié les conditions de fissuration de la couche de zircone. La figure VII-18 montre que cette fissuration intervient en pointe de fissure lors de la montée en pression et au même instant quel que soit l'essai de CSC modélisé. Le début de la propagation par CSC est *a priori* identique si la durée d'amorçage est supposée nulle, et la fissure se propagerait alors au cours de la montée.

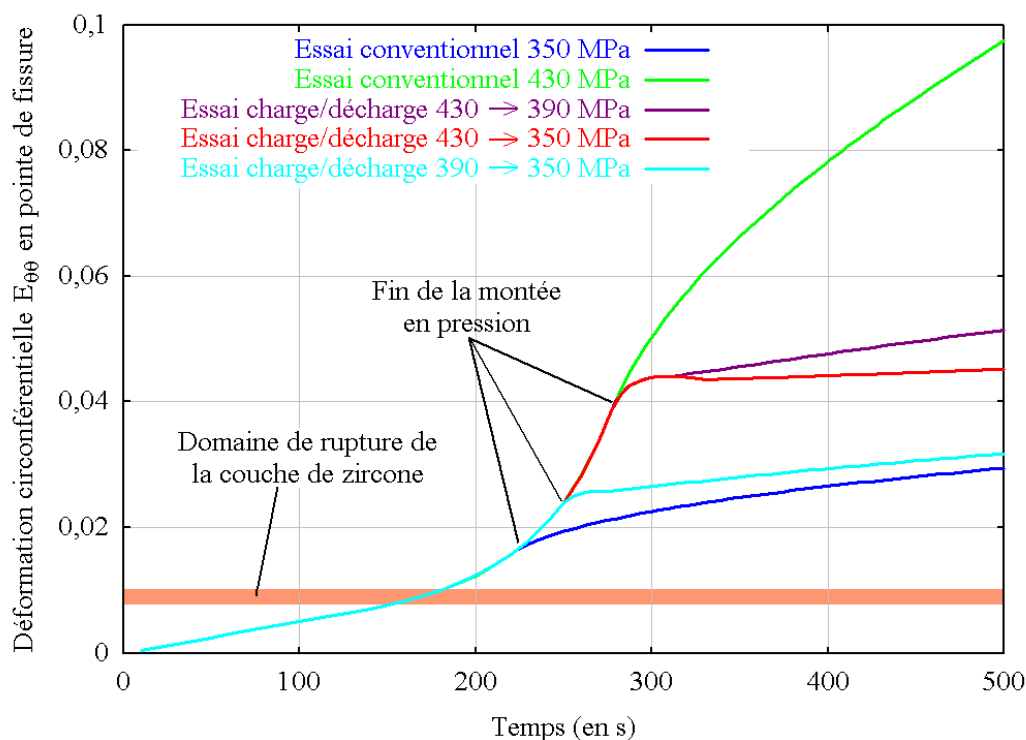


FIG. VII-18. Évolution de la déformation circonférentielle  $E_{\theta\theta}$  à 2  $\mu\text{m}$  de la pointe de fissure au cours des essais de CSC sur éprouvettes préfissurées (taille de 100  $\mu\text{m}$ ) en Zircaloy-4 détendu à 350 °C. Estimation par simulation numérique de l'instant de fissuration de la couche de zircone.

Au vu de ces calculs, même pour une préfissure de grande taille, il est nécessaire d'imposer une sollicitation mécanique importante pour que la fissuration de la couche d'oxyde intervienne lors de la montée en pression. La contrainte circonférentielle minimale à imposer est évaluée à 275 MPa. En dessous de cette valeur, la fissuration de la couche de zircone ne se produit que lors du maintien en contrainte durant le fluage et nous nous retrouvons alors dans la même situation que lors des essais sur tubes sains. L'essai conventionnel préfissuré à 280 MPa est très proche de cette limite, ce qui peut expliquer la durée de vie importante de cet essai, et nous serions, pour cet essai, en pointe de fissure dans des conditions soit de propagation très lente en CSC, soit défavorables à l'amorçage de la propagation, qui débiterait plus tardivement au cours de l'essai.

Ces simulations nous permettent de suivre les évolutions en pointe de fissure de certaines grandeurs mécaniques et ainsi de voir l'effet de la surcharge sur ces paramètres. Les résultats sont présentés à la figure VII-19 pour la contrainte circonférentielle  $\Sigma_{\theta\theta}$  et la vitesse de déformation viscoplastique circonférentielle  $\dot{E}_{\theta\theta}^{vp}$  en pointe de fissure.

Sur ces deux figures VII-19a et VII-19b, nous pouvons constater que l'effet de la surcharge est peu important sur les champs mécaniques régnant en pointe de fissure. La contrainte circonférentielle et la vitesse de déformation viscoplastique lors des essais de charge/décharge restent, en pointe de fissure, du même ordre de grandeur que lors des essais conventionnels. Ceci peut expliquer que les durées de vie obtenues expérimentalement sont finalement très proches. Rappelons toutefois que nous n'avons pas simulé la propagation de la préfissure pour ces calculs.

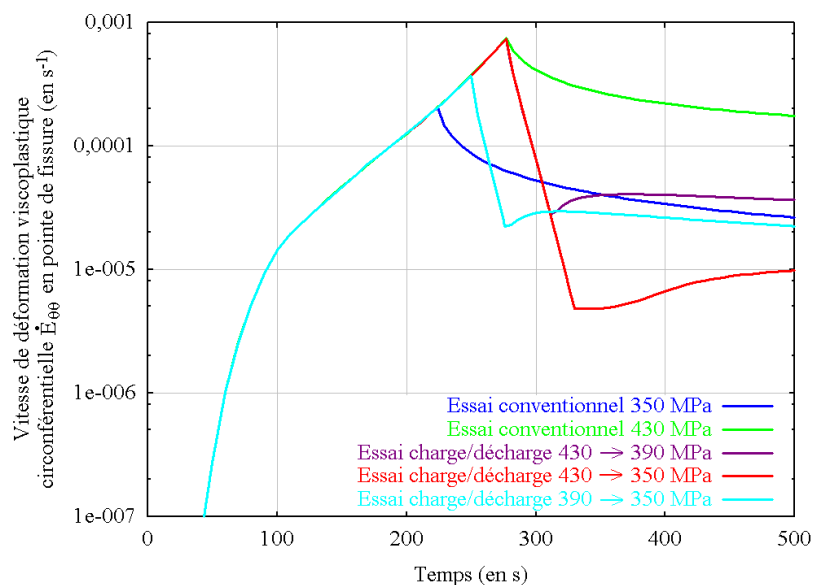
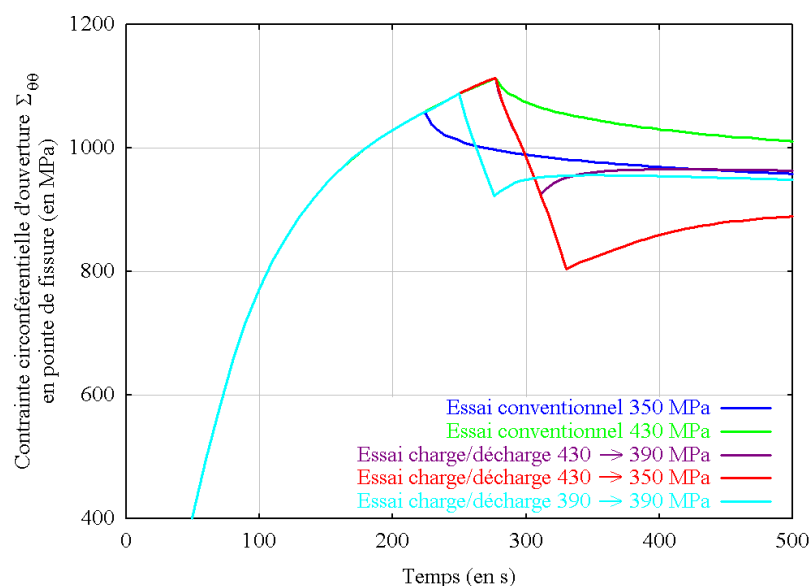
(a) Vitesse de déformation viscoplastique circonférentielle  $\dot{E}_{\theta\theta}^{vp}$ .(b) Contrainte circonférentielle d'ouverture de la fissure  $\Sigma_{\theta\theta}$ .

FIG. VII-19. Évolution de différents paramètres mécaniques à  $2 \mu\text{m}$  de la pointe de fissure au cours des essais de CSC sur tubes préfissurés, profondeur initiale du défaut de  $100 \mu\text{m}$ . Zircaloy-4 détendu non irradié à la température de  $350^\circ\text{C}$ .

### Synthèse des essais de CSC sur tubes préfissurés

Au travers de cette campagne d'essais de CSC sur éprouvettes préfissurées, nous avons pu montrer, outre que les essais de charge/décharge étaient réalisables, qu'il était possible de n'étudier que les seuls mécanismes de la corrosion sous contrainte des alliages de zirconium. Même si les données expérimentales sont peu nombreuses, les résultats, tant expérimentaux que numériques, sont encourageants et nécessitent d'être approfondis. Un point important est la détermination de la loi de propagation des fissures de CSC au cours des différents trajets de chargement mécanique. La réalisation d'essais de CSC interrompus sur éprouvettes préfissurées semble être une poursuite intéressante et prometteuse à nos travaux ; le développement d'une méthode permettant de distinguer la préfissure de la phase de propagation du défaut reste un

préalable. Parallèlement, les simulations numériques sont à poursuivre afin de comprendre l'influence du chargement mécanique sur la pointe de fissure.

### **3 CONCLUSIONS**

Un programme spécifique d'essais de CSC interrompus associés à des observations au MEB a été mis en œuvre. Nous avons démontré l'existence d'une phase d'incubation qui précède l'amorçage et la propagation des fissures de CSC. Cette phase, spécifique aux essais conduits sur tubes sains, correspond à la durée nécessaire pour fissurer la couche de zircone passive et mettre à nu le métal. Cette étape d'incubation ne doit pas être confondue avec l'étape d'amorçage proprement dit des fissures de CSC. Les conditions mécaniques gouvernant cet amorçage des défauts sont encore à préciser, sachant que cet amorçage peut être très rapide dès que le métal est mis à nu.

Au vu de nos observations, il semble également que les vitesses de propagation intergranulaire aient été vraisemblablement très sous-estimées. Ces vitesses seraient plutôt voisines de celles déterminées expérimentalement pour la phase de propagation transgranulaire, traduisant une continuité entre ces deux phases de propagation. De plus, ceci serait compatible avec l'hypothèse d'un mécanisme physique unique pour décrire la CSC des alliages de zirconium.

Les premiers résultats acquis sur tubes préfissurés montre qu'il est possible de supprimer l'étape d'incubation et de n'étudier expérimentalement que le seul phénomène de fissuration par CSC. Il est important de poursuivre ces travaux. En effet, les conditions régnant en réacteur sont telles que la fissuration de la couche de zircone n'est absolument pas une étape prépondérante dans la rupture des gaines des crayons combustibles lors d'un transitoire de puissance important. Les déformations mécaniques locales créées par l'interaction pastille-gaine sont suffisantes pour rompre cette couche, lorsqu'elle existe, dès les premiers instants de la montée en puissance du réacteur, avant que l'iode ne commence à être relâché de la pastille. Cependant, les sollicitations complexes imposées à la gaine en réacteur sont très différentes de celles des nos essais de CSC. Le développement de simulations numériques n'en est que plus nécessaire, afin de pouvoir transposer les conditions gouvernant la CSC, déterminées lors des essais de laboratoire, aux différentes situations pouvant exister en réacteur.

## ***ANNEXES DU CHAPITRE VI***



# CHAPITRE VI - ANNEXE A.

## DONNÉES EXPÉRIMENTALES DES ESSAIS « CONVENTIONNELS »

Cette annexe présente tous les résultats expérimentaux des essais conventionnels sous forme de tableaux, résultats repris sous forme synthétique dans le corps du chapitre VI.

TABLEAU VI-A1. Campagne d'essais de pressurisation interne réalisés sur des tubes en Zircaloy-4 à l'état détendu non irradié (« lot A ») à la température de 350 °C [Rouillon et al. 1997].

Essai	Atmosphère	$\Sigma_{\theta\theta}$ (en MPa)	Temps à rupture $t_R$ (en h)	Type de rupture	Déformation $E_{\theta\theta}^{vp}$	Vitesse moyenne $\dot{E}_{\theta\theta}^{vp}$ (en $s^{-1}$ )
A_0c_1	Hélium	528	0,10	Éclat.	-	-
A_0c_2		511	0,16	Éclat.	-	-
A_0c_3		495	0,53	Éclat.	0,0320	$1,7 \cdot 10^{-5}$
A_0c_4		483	0,69	Éclat.	0,0389	$1,6 \cdot 10^{-5}$
A_0c_5		434	5,36	Éclat.	-	-
A_0c_6		412	14,79	Éclat.	-	-
A_0c_7		387	46,45	Éclat.	0,0564	$3,4 \cdot 10^{-7}$
A_0c_8	Iode	500	0,35	CSC+Éclat.	-	-
A_0c_9		473	1,00	CSC+Fiss.	-	-
A_0c_10		450	0,72	CSC+Fiss.	0,0121	$4,7 \cdot 10^{-6}$
A_0c_11		450	1,48	CSC+Fiss.	0,0203	$3,8 \cdot 10^{-6}$
A_0c_12		450	2,05	CSC+Éclat.	-	-
A_0c_13		430	1,82	CSC+Fiss.	0,0163	$2,5 \cdot 10^{-6}$
A_0c_14		415	2,46	CSC+Fiss.	0,0152	$1,7 \cdot 10^{-6}$
A_0c_15		415	5,00	CSC+Éclat.	-	-
A_0c_16		400	3,95	CSC+Fiss.	0,0123	$8,7 \cdot 10^{-7}$
A_0c_17		385	4,61	CSC+Fiss.	-	-
A_0c_18		385	6,26	CSC+Éclat.	-	-
A_0c_19		346	6,80	CSC+Fiss.	0,0189	$7,7 \cdot 10^{-7}$
A_0c_20		302	18,15	CSC+Fiss.	-	-
A_0c_21		297	59,65	CSC+Fiss.	0,0139	$6,5 \cdot 10^{-8}$

CSC : présence d'un défaut de CSC conduisant à la rupture.

Éclat. : éclatement du tube en son milieu.

Fiss. : fissure débouchante de CSC (légèrement décentrée).



TABLEAU VI-A2. Campagne d'essais de pressurisation interne réalisés sur des tubes en Zircaloy-4 à l'état détendu irradié un cycle REP à la température de 350 °C [Rouillon 1999].

Essai	Atmosphère	$\Sigma_{\theta\theta}$ (en MPa)	Temps à rupture $t_R$ (en h)	Type de rupture	Déformation $E_{\theta\theta}^{vp}$	Vitesse moyenne $\dot{E}_{\theta\theta}^{vp}$ (en $s^{-1}$ )
<i>1c_1</i>	Hélium	688	0,32	Éclat.	> 0,022	-
<i>1c_2</i>		628	5,16	Éclat.	> 0,037	-
<i>1c_3</i>		503	78,52	Éclat.	> 0,040	-
<i>1c_4</i>		650	2,5	Essai interrompu	0,0410	$4,6.10^{-6}$
<i>1c_5</i>		503	49,0	Essai interrompu	0,0259	$1,5.10^{-7}$
<i>1c_6</i>	Iode (85 mg)	506	0,49	CSC+Éclat.	0,0002	$1,1.10^{-7}$
<i>1c_7</i>	Iode (95 mg)	507	0,46	CSC+Éclat.	0,0002	$1,2.10^{-7}$
<i>1c_8</i>	Iode (75 mg)	403	0,72	CSC+Éclat.	0,0050	$1,9.10^{-6}$
<i>1c_9</i>	Iode (89 mg)	403	0,66	CSC+Éclat.	0,0002	$8,4.10^{-8}$
<i>1c_10</i>	Iode (89 mg)	202	1,03	CSC+Fiss.	0,0009	$2,4.10^{-7}$
<i>1c_11</i>	Iode (78 mg)	202	1,74	CSC+Fiss.	0,0002	$3,2.10^{-8}$
<i>1c_12</i>	Iode (82 mg)	162	1,45	CSC+Fiss.	0,0008	$1,5.10^{-7}$
<i>1c_13</i>	Iode (81 mg)	162	2,79	CSC+Fiss.	0,0002	$2,0.10^{-8}$
<i>1c_14</i>	Iode (82 mg)	141	6,03	CSC+Fiss.	0,0007	$3,2.10^{-8}$

CSC : présence d'un défaut de CSC conduisant à la rupture.

Éclat. : éclatement du tube en son milieu.

Fiss. : fissure débouchante de CSC (légèrement décentrée).

TABLEAU VI-A3. Campagne d'essais de pressurisation interne réalisés sur des tubes en Zircaloy-4 à l'état détendu irradié deux cycles REP à la température de 350 °C.

Essai	Atmosphère	$\Sigma_{\theta\theta}$ (en MPa)	Temps à rupture $t_R$ (en h)	Type de rupture
<i>2c_1</i>	Hélium	506	73,9	Éclat.
<i>2c_2</i>	Iode	506	0,60	CSC+Éclat.
<i>2c_3</i>		402	0,84	CSC+Éclat.
<i>2c_10</i>		402	0,47	CSC+Éclat.
<i>2c_4</i>		207	0,55	CSC+Fiss.
<i>2c_5</i>		206	0,96	CSC+Fiss.
<i>2c_6</i>		207	1,75	CSC+Fiss.
<i>2c_7</i>		167	1,46	CSC+Fiss.
<i>2c_8</i>		168	3,95	CSC+Fiss.
<i>2c_9</i>		143	2,98	CSC+Fiss.*

CSC : présence d'un défaut de CSC conduisant à la rupture.

Éclat. : éclatement du tube en son milieu.

Fiss. : fissure débouchante de CSC au centre du tube, sauf \* légèrement décentrée.

Dans le temps imparti de nos travaux, des contraintes techniques n'ont pas permis de disposer des mesures de diamètres après ces essais sur matériau irradié deux cycles REP.

## CHAPITRE VI - ANNEXE B.

### DONNÉES EXPÉRIMENTALES DES ESSAIS DE « CHARGE/DÉCHARGE »

Cette annexe présente les résultats de la validation et de la campagne d'essais de charge/décharge sous forme de tableaux, résultats repris sous forme synthétique dans le corps du chapitre VI.

TABLEAU VI-B1. Campagne d'essais *conventionnels* CSC réalisés sur des tubes en Zircaloy-4 à l'état détendu non irradié (« **lot B** ») à 350 °C - Influence de la *concentration initiale en iode*.

Essai	$\Sigma_{\theta\theta}$ (en MPa)	Temps à rupture $t_R$ (en h)	Type de rupture	Déformation $E_{\theta\theta}^{vp}$	Vitesse moyenne $\dot{E}_{\theta\theta}^{vp}$ (en $s^{-1}$ )
Masse initiale en iode de 30 mg					
B_0c_1	350	4,21	Fiss. CSC	0,0031	$2,0.10^{-7}$
B_0c_2		3,97	Fiss. CSC	0,0033	$2,3.10^{-7}$
B_0c_3		5,23	Fiss. CSC	0,0033	$1,8.10^{-7}$
B_0c_4		5,00	Fiss. CSC	0,0040	$2,2.10^{-7}$
Masse initiale en iode de 75 mg					
B_0c_5	350	6,67	Fiss. CSC	0,0039	$1,6.10^{-7}$
B_0c_6		3,40	Fiss. CSC	0,0028	$2,3.10^{-7}$
B_0c_7		2,49	Fiss. CSC *	0,0024	$2,7.10^{-7}$
B_0c_8		3,22	Fiss. CSC	0,0035	$3,0.10^{-7}$
B_0c_9		2,90	Fiss. CSC *	0,0030	$2,9.10^{-7}$
Masse initiale en iode de 120 mg					
B_0c_10	350	2,65	Fiss. CSC <sup>+</sup>	0,0027	$2,8.10^{-7}$
B_0c_11		4,55	Fiss. CSC <sup>+</sup>	0,0039	$2,4.10^{-7}$
B_0c_12		4,00	Fiss. CSC <sup>+</sup>	0,0038	$2,7.10^{-7}$
B_0c_13		3,51	Fiss. CSC <sup>+</sup>	0,0033	$2,6.10^{-8}$

Fiss. CSC : défaut débouchant de CSC conduisant à la rupture.  
 \* : indique que la fissure débouchante est légèrement décentrée.  
 + : présence d'une tache grise sur la surface externe autour du défaut débouchant (attaque de la surface externe par l'iode évacué lors de la rupture).

TABLEAU VI-B2. Campagne d'essais *conventionnels* de CSC réalisés sur des tubes en Zircaloy-4 à l'état détendu non irradié (« **lot C** ») à la température de 350 °C.

Essai	$\Sigma_{\theta\theta}$ (en MPa)	Temps à rupture $t_R$ (en h)	Type de rupture	Déformation $E_{\theta\theta}^{vp}$	Vitesse moyenne $\dot{E}_{\theta\theta}^{vp}$ (en s <sup>-1</sup> )
C_0c_1	350	6,87	Fiss. CSC	0,0055	2,2.10 <sup>-7</sup>
C_0c_2		6,50	Fiss. CSC	0,0054	2,3.10 <sup>-7</sup>
C_0c_3		5,63	Fiss. CSC	0,0048	2,4.10 <sup>-6</sup>
C_0c_4		6,34	Fiss. CSC	0,0053	2,3.10 <sup>-8</sup>
C_0c_5	430	2,74	Fiss. CSC	0,0117	1,2.10 <sup>-6</sup>
Tous les essais ont été réalisés avec une masse initiale d'iode de 75 mg					

Fiss. CSC : défaut de CSC débouchant au milieu du tube conduisant à la rupture.

TABLEAU VI-B3. Essais *conventionnels* de CSC supplémentaires réalisés sur le « **lot C** » à la température de 350 °C - Ces essais ont été réalisés sur le dispositif expérimental réservé aux matériaux irradiés afin de vérifier le bon fonctionnement de ce dernier avant d'entamer la campagne d'essais sur Zircaloy-4 détendu irradié deux cycles REP (tableaux VI-A3 et VI-4).

Essai	Atmosphère	$\Sigma_{\theta\theta}$ (en MPa)	Temps à rupture $t_R$ (en h)	Type de rupture
C_0c_V1	Iode (≈ 75 mg)	352	9,09	Fiss. CSC décentrée
C_0c_V2		350	4,27	Fiss. CSC centrée
C_0c_V3		352	7,71	Fiss. CSC centrée
C_0c_V4		353	3,16	Fiss. CSC centrée

Fiss. CSC : défaut de CSC débouchant conduisant à la rupture.

TABLEAU VI-B4. Essais de charge/décharge de CSC réalisés sur des tubes en Zircaloy-4 à l'état détendu non irradié (« **lot B** ») à la température de 350 °C.

Essai	$\Sigma_H$ (en MPa)	$\Sigma_B$ (en MPa)	Durée du palier haut (en min)	Temps à rupture $t_R$ (en h)	Déformation $E_{\theta\theta}^{vp}$	Type de rupture
B_0c_D1	428	351	0	4,36	0,0041	Fiss. CSC
B_0c_D2	430	349		4,97	0,0040	Fiss. CSC
B_0c_D3	429	349		4,22	0,0034	Fiss. CSC
B_0c_D4	431	350	20	4,13	0,0050	Fiss. CSC
B_0c_D5	430	349		4,53	0,0060	Fiss. CSC
B_0c_D6	430	350	60	3,80	0,0077	Fiss. CSC
B_0c_D7	431	351		3,91	0,0083	Fiss. CSC

Fiss. CSC : défaut de CSC débouchant au milieu du tube conduisant à la rupture.

Dans cette campagne d'essais, tous les tubes présentent une tache grise sur la surface externe du tube, suite à l'attaque de cette surface par l'iode s'évacuant dans l'enceinte suite à la rupture du tube.

TABLEAU VI-B5. Essais de charge/décharge de CSC réalisés sur des tubes en Zircaloy-4 à l'état détendu non irradié (« **lot C** ») à la température de 350 °C.

<i>Essai</i>	$\Sigma_H$ (en MPa)	$\Sigma_B$ (en MPa)	<i>Durée du palier haut</i> (en min)	<i>Temps à rupture</i> $t_R$ (en h)	<i>Déformation</i> $E_{\theta\theta}^{vp}$	<i>Type de rupture</i>
<i>C_0c_D1</i>	429	353	60	5,15	0,0083	Fiss. CSC
<i>C_0c_D2</i>	430	353		6,77	0,0094	Fiss. CSC
<i>C_0c_D3</i>	431	352		5,03	0,0087	Fiss. CSC
<i>C_0c_D4</i>	431	350		4,49	0,0078	Fiss. CSC
<i>C_0c_D5</i>	430	350		4,96	0,0088	Fiss. CSC
<i>Essais de charge/décharge pour lesquels les conditions de chargement ont été modifiées</i>						
<i>C_0c_D6</i>	271	351	60	5,84	0,0045	Fiss. CSC
<i>C_0c_D7</i>	274	350	5,3 h	8,01	0,0030	Fiss. CSC

Fiss. CSC : défaut de CSC débouchant au milieu du tube conduisant à la rupture.



***CONCLUSIONS  
ET  
PERSPECTIVES***



## *CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES*

La gaine des crayons combustibles des réacteurs à eau sous pression (REP) constitue la première barrière contre la dissémination des produits de fission. Il est donc primordial de garantir son intégrité au cours de son utilisation en réacteur, ainsi qu'en aval du cycle combustible. Lors de sollicitations importantes, suite à un sévère transitoire de puissance du réacteur, la rupture de la gaine peut intervenir par un phénomène de corrosion sous contrainte (CSC), sous l'action conjuguée des sollicitations mécaniques et des produits de fission gazeux engendrés par les pastilles de combustible. Depuis de nombreuses années, ces phénomènes de CSC des alliages de zirconium ont donc fait l'objet de recherches importantes, essentiellement orientées suivant deux axes distincts, la sollicitation appliquée, d'une part, et les mécanismes physiques, d'autre part. La modélisation des champs mécaniques résultant de l'interaction pastille-gaine (IPG) est un problème complexe du point de vue de ses conditions aux limites (fragmentation de la pastille, conditions de frottement, aspects tridimensionnels du problème...) mais aussi concernant les lois de comportement du matériau qui doivent rendre compte à la fois de l'élastoviscoplasticité et de l'anisotropie du matériau, ainsi que leurs évolutions suite à l'irradiation en REP. L'étude des mécanismes physiques est réalisée le plus souvent sur la base d'expériences en laboratoire visant à reproduire au mieux les conditions rencontrées en réacteur, mais cette simulation est très délicate du fait de la multiplicité des paramètres susceptibles d'intervenir : chargement mécanique, environnement chimique (iode, oxygène...). Par ailleurs, les mécanismes physiques mis en jeu, qui se situent à l'échelle atomique, sont souvent complexes à analyser, notamment dans leurs aspects cinétiques. À ces difficultés, il faut ajouter celles propres aux expériences sur matériaux irradiés qui doivent nécessairement accompagner les essais sur matériau non irradié.

L'étude préliminaire, que nous avons menée sur la modélisation mécanique de l'interaction pastille-gaine, nous a confirmé les difficultés de l'approche purement mécanique et nous a conduit à proposer une démarche mixte, s'appuyant sur la base expérimentale très riche déjà établie sur le sujet. Cette démarche comporte trois volets complémentaires :

- la modélisation des champs mécaniques locaux appliqués lors de ces essais ;
- la réalisation d'essais spécifiques visant à séparer l'action des différents paramètres mécaniques ;
- l'observation des mécanismes d'endommagement associés à ces différentes expériences.

La modélisation s'est ainsi limitée aux sollicitations mécaniques appliquées lors des expériences de laboratoire, qui présentent l'avantage d'être plus simples et plus reproductibles que les sollicitations réelles. Le couplage entre la modélisation mécanique et les expériences permet également une meilleure maîtrise des conditions expérimentales réellement appliquées, à la condition de disposer de lois de comportement suffisamment précises du matériau. L'établissement de lois de comportement adaptées a ainsi constitué la première étape de notre travail.

Une modélisation plus fine du comportement élastoviscoplastique anisotrope des alliages de zirconium et de son évolution avec l'irradiation s'avère nécessaire afin de pouvoir décrire la complexité des sollicitations thermomécaniques subies par la gaine en réacteur ou lors d'essais



de laboratoire spécifiques. Nous avons ainsi réalisé l'identification d'une modélisation polycristalline du comportement du Zircaloy-4 détendu à la température de 350 °C dans l'état non irradié et après irradiation deux cycles REP. Nous avons vu qu'il était impératif de tenir compte de l'activation du glissement basal pour une description correcte du comportement des alliages de zirconium irradiés, ainsi que l'activation des systèmes secondaires quel que soit le niveau d'irradiation. Les résultats obtenus sont cohérents avec les observations microstructurales de la littérature ; l'introduction de nouvelles investigations expérimentales, notamment sur alliages irradiés, permettra de compléter ces travaux. Les sollicitations rencontrées lors de l'IPG et en pointe d'une fissure de CSC nécessitent la détermination de toutes les composantes d'anisotropie associées aux termes de cisaillement, composantes inaccessibles par des essais mécaniques. Notre *démarche hiérarchique*, dont le but est d'accroître le caractère prédictif de modèles macroscopiques en intégrant une approche micromécanique basée sur les mécanismes physiques de la déformation, nous a permis d'obtenir une caractérisation complète de l'anisotropie viscoplastique du Zircaloy-4 détendu. Le principal résultat de cette identification est la diminution de cette anisotropie avec l'irradiation. À ce stade, nous disposons d'un outil numérique fiable nous permettant de décrire les champs mécaniques régnant dans la gaine au voisinage d'une fissure de CSC.

Notre travail avait pour but d'étudier le rôle de différents paramètres sur le processus de fissuration par corrosion sous contrainte des alliages de zirconium. Nous nous sommes limités à étudier l'influence du chargement mécanique sur la CSC et, notamment, l'existence d'une corrélation éventuelle entre la corrosion sous contrainte et la vitesse de déformation viscoplastique locale, comme le suggère la synthèse bibliographique que nous avons effectuée. Pour cela, nous avons mis en place une démarche expérimentale spécifique, couplée à une approche numérique par éléments finis afin d'accéder aux champs mécaniques locaux. Cette démarche a été mise en œuvre pour le Zircaloy-4 à l'état détendu non irradié et initiée sur le matériau irradié. Elle peut être étendue à d'autres alliages de zirconium.

Le programme d'essais de CSC spécifiques, associés à des observations au MEB, a permis de démontrer l'existence d'une *phase d'incubation*. Cette phase d'incubation, qui constitue une part importante de la durée de vie mesurée lors des essais de CSC en pressurisation interne, est une étape propre à ces essais de laboratoire et doit être distinguée des mécanismes de corrosion sous contrainte proprement dits. Elle correspond à la durée nécessaire pour mettre à nu le métal soit par *fissuration mécanique de la couche de zircone* lors de sollicitations mécaniques importantes, soit par attaque chimique par l'iode de cette couche en l'absence de chargement, pour des durées importantes d'exposition. Ces deux mécanismes de mise à nu du métal peuvent agir en parallèle. Les premiers résultats sur éprouvettes préfissurées montrent que la suppression de cette phase, qui introduit un biais dans l'analyse des essais de laboratoire, est possible. Par ailleurs, elle n'est pas représentative de la situation en réacteur, puisque les sollicitations mécaniques locales sont telles que la rupture de la couche d'oxyde doit intervenir dès les premiers instants des transitoires de puissance. Si l'on souhaite n'étudier que les mécanismes de CSC et se rapprocher ainsi des conditions réelles, il apparaît primordial d'éliminer cette phase d'incubation en poursuivant les travaux entrepris sur éprouvettes préfissurées. Le calcul de structure nous a en effet permis de vérifier que, lors des essais sur tubes préfissurés, les conditions étaient *a priori* réunies pour que la fissuration de la couche de zircone en pointe de fissure se produise presque instantanément.

Nous avons également montré que l'amorçage et la propagation de fissures de CSC peuvent être très rapides quand le métal est mis à nu en présence d'iode. Les conditions mécaniques gouvernant l'amorçage et la propagation des fissures de CSC n'ont pu cependant être entièrement précisées au cours de cette étude, le découplage des paramètres étant très difficile à réaliser expérimentalement. La vitesse de déformation reste néanmoins le paramètre qui apparaît

le plus pertinent. De plus, au vu de nos observations, il semble que les vitesses de propagation intergranulaire sont très vraisemblablement sous-estimées. Il est important de préciser ce point et de vérifier si la phase de propagation intergranulaire constitue réellement l'étape lente du processus de CSC des alliages de zirconium ou si, comme nous le pensons, les deux modes de propagation intergranulaire et transgranulaire présentent des vitesses similaires. L'observation de zones de propagation mixte intergranulaire-transgranulaire, qui correspondent, dans le cas des alliages de zirconium recristallisé, à la part la plus importante de la propagation, semble montrer qu'il existe une continuité entre ces deux modes de propagation. L'existence de ces zones pourrait n'être que la manifestation d'un seul et même mécanisme physique. Les modes de propagation intergranulaire ou transgranulaire seraient alors uniquement liés aux champs mécaniques régnant au voisinage de la pointe de la fissure.

Une meilleure connaissance des mécanismes physiques de la CSC nous semble également indispensable. En effet, jusqu'à présent, l'adsorption de l'iode était considérée comme un phénomène instantané vis-à-vis des phénomènes mécaniques. Il serait cependant intéressant de déterminer la cinétique d'adsorption de l'iode dans les mécanismes de corrosion sous contrainte et de vérifier que l'adsorption n'est pas une étape susceptible de limiter le processus de fissuration. En effet, nous pouvons imaginer le mécanisme de CSC suivant. La viscoplasticité du matériau crée des sites potentiels d'adsorption de l'iode, par émergence de bandes de glissement en surface (amorçage) ou en pointe de fissure (propagation). Si la vitesse de création de ces sites, que l'on peut relier à la vitesse de déformation locale, est supérieure à la cinétique d'adsorption, le matériau s'endommage par viscoplasticité (rupture par déchirure ductile), même en présence d'une espèce corrosive. Par contre, si la vitesse de création de sites devient inférieure à celle d'adsorption de l'iode, la propagation de la fissure s'effectue par fragilisation du matériau. La fissure se propage alors, soit le long d'un joint de grain (intergranulaire), soit au travers d'un grain (transgranulaire). Le mode de propagation serait gouverné par les champs mécaniques en pointe de fissure pouvant varier d'un grain à l'autre (effet de texture local). Ce scénario est compatible avec l'existence d'une vitesse de déformation seuil.

Il est important de noter le rôle de l'oxygène, issu de l'environnement, qui peut venir perturber le processus de fissuration par CSC. Rappelons que la concentration d'oxygène libre en réacteur est pratiquement nulle et que seul un vide primaire est réalisé lors des essais de CSC en pressurisation interne. Le contrôle de l'environnement en iode et oxygène résiduel devient essentiel pour les expériences de laboratoire, surtout à faibles concentrations en iode telles que celles estimées en réacteur. De plus, la concentration en iode n'est pas contrôlée au cours des essais. Il serait, par exemple, intéressant de pouvoir introduire des quantités contrôlées d'iode, à différents instants, en fonction de la sollicitation mécanique appliquée.

Parallèlement à l'étude des mécanismes physiques et à l'amélioration des conditions expérimentales, le développement d'un outil de simulation des champs mécaniques locaux, couplé à la réalisation d'essais de CSC spécifiques, est à poursuivre en prenant en compte les multiples échelles intervenant dans le problème de la fissuration par CSC des alliages de zirconium. Les simulations présentées dans ce mémoire se sont limitées à l'échelle macroscopique, mais nos observations tendent à montrer que l'échelle cristalline du matériau est une échelle plus pertinente pour déterminer les conditions d'amorçage et de propagation. Bien que des simulations à l'échelle des grains n'aient pas été conduites dans le cadre de ce travail, les résultats obtenus au chapitre V de ce mémoire nous permettent déjà de disposer d'un modèle d'élastoviscoplasticité cristalline (pour deux niveaux d'irradiation) utilisable pour ces calculs. Enfin, la modélisation numérique de l'interaction pastille-gaine devra être poursuivie car elle constitue un outil incontournable pour transposer les résultats des essais de laboratoire aux sollicitations réelles rencontrées en réacteur.



***RÉFÉRENCES***  
***BIBLIOGRAPHIQUES***



- AKHTAR A., *Compression of zirconium single crystals parallel to the c-axis*, Journal of Nuclear Materials 47 (1973) p. 655-663
- ATRENS A., DANNHÄUSER G., BÄRO G., *Stress corrosion cracking of Zircaloy-4 cladding tubes. Part 1. Threshold in the presence of iodine*, Journal of Nuclear Materials 126 (1984) p. 91-102
- BAILLY H., MÉNESSIER D., PRUNIER C., *Le combustible nucléaire des réacteurs à eau sous pression et des réacteurs à neutrons rapides - Conception et comportement*, Collection du Commissariat à l'Énergie Atomique, Série synthèses, Éditions Eyrolles (1996)
- BAIN A.S., WOOD J.C., COLEMAN C.E., *Fuel designs to eliminate defects on power increases*, International Conference of the British Nuclear Energy Society on Nuclear Fuel Performance, London (1973) paper 56
- BÄRO G., DANNHÄUSER G., ATRENS A., *Deformation and fracture properties of stress relieved Zircaloy-4 in iodine, caesium, cadmium and a mixture of caesium/cadmium*, Res Mechanica 17 (1986) p. 99-124
- BATDORF S.B., BUDIANSKY B., *A mathematical theory of plasticity based on the concept of slip*, NACA Technical Note 1877 (1949)
- BÉCHADE J.L., *Communication privée* (1999)
- ROBERT-BÉRAT L., *Influence d'une couche de zircone sur le comportement mécanique des tubes en Zircaloy-4*, Thèse de doctorat en Physique des matériaux de l'Université de Clermont-Ferrand (2001)
- BERVEILLER M., ZAOUÏ A., *An extension of the self-consistent scheme to plastically flowing polycrystals*, Journal of the Mechanics and Physics of Solids 26 (1979) p. 325-344
- BIBILASHVILI YU.K., TONKOV V.YU., SOTNIKOV A.S., KULIKOV I.A., NOVIKOV V.V., SOLYANY V.I., *Out-of-pile investigation of cladding behaviour for VVER-type fuel elements in atmosphere simulating fission products (I,Cs)*, Res Mechanica 17 (1986) p. 11-20
- BIBILASHVILI YU.K., DOLGOV YU.N., NESTEROV B.I., NOVIKOV V.V., *Propagation of stress corrosion cracks in Zr-1 % Nb claddings*, Journal of Nuclear Materials 224 (1995) p. 307-310
- BIBILASHVILI YU.K., DOLGOV YU.N., NESTEROV B.I., NOVIKOV V.V., *Investigation of the growth rate of cracks in shells made of the alloy Zr-1 % Nb under conditions of iodine corrosion cracking under stress*, Atomic Energy 80 (1996 [a]) p. 90-94
- BIBILASHVILI YU.K., DOLGOV YU.N., NOVIKOV V.V., GLAZKOV A.G., *The initiation of cracks in cladding tubes of Zr-1 % Nb alloy under stress corrosion cracking conditions*, Atomic Energy 80 (1996 [b]) p. 242-247
- BOND G.G., CORDALL D., CORNELL R.M., FOX W.N., GARLICK A., HOWL D.A., *SGHWR fuel performance under power ramp conditions*, Journal of British Nuclear Energy Society 16 (1977) p. 225-235
- BOSSIS PH., *Corrosion sous contrainte du Zircaloy-4 par l'iode – Influence de la teneur en fer et en chrome, modélisation et représentativité de l'essai de pressurisation interne*, Rapport de DEA INPG (1995) et Note technique interne CEA Grenoble DTP/SECC n°96/007 A (1996)
- BOYER J.M., MÉNARD M., *Examens métallographiques du crayon Fabrice K08-3 irradié dans Osiris*, Rapport interne CEA DRN/DMT n°94/502 (1994)
- CAGNON M., *Théorie de l'activation thermique*, École d'été d'Yrvals « Dislocations et déformation plastique », Éditeurs scientifiques P. Groh, L.P. Kubin, J.L. Martin, Les Éditions de Physique (1979)
- CAILLETAUD G., *Une approche micromécanique phénoménologique du comportement inélastique des métaux*, Thèse de Doctorat d'État ès Sciences Physiques de l'Université Pierre et Marie Curie (1987)

- CIOCAN E., IGNAT M., GHEORGHIU E., *The effect of the cracking plane crystallographic orientation on the stress corrosion cracking process*, Journal of Nuclear Materials 255 (1998) p. 1-13
- CHOO K.-N., PYUN S.-I., CHOI J.-K., *A study on the mechanism of iodine-induced stress-corrosion cracking of Zircaloy-4*, Journal of Nuclear Materials 149 (1987) p. 289-295
- COFFIN L.F., *Localized ductility method for evaluating Zircaloy-2 cladding*, Zirconium in Nuclear Industry (Fourth Conference), ASTM STP 681 (1979) p. 72-87
- COUSSY O., *Mécanique des milieux poreux*, Éditions Technip, Paris (1991)
- COX B., WOOD J.C., *The mechanism of SCC of zirconium alloys in halogens*, International Conference on Mechanisms of Environment Sensitive Cracking of Materials, University of Surrey (1977) p. 520-530
- COX B., *A fractographic distinction between hydride cracking and stress corrosion cracking in Zircalloys*, Rapport AECL-6181 (juin 1978), présenté à NACE Corrosion Research Conference Corrosion 78, Houston, Texas (mars 1978)
- COX B., SURETTE B.A., WOOD J.C., *Stress corrosion cracking of Zircalloys in unirradiated and irradiated CsI*, Journal of Nuclear Materials 138 (1986) p. 89-98
- COX B., HADDAD R., *Recent studies of crack initiation during stress corrosion cracking of zirconium alloys*, Zirconium in the Nuclear Industry : 7<sup>th</sup> Symposium, ASTM STP 939, (1987) p. 717-733
- COX B., *Environmentally-induced cracking of zirconium alloys - A review*, Journal of Nuclear Materials 170 (1990 [a]) p. 1-23
- COX B., *Pellet-clad interaction (PCI) failures of zirconium alloy fuel cladding - a review*, Journal of Nuclear Materials 172 (1990 [b]) p. 249-292
- CUBICCIOTTI D., DAVIES J.H., *The release of iodine from iodide salts by gamma radiolysis*, Nuclear Science Engineering 60 (1976) p. 314-319
- CUBICCIOTTI D., SANECKI J.E., *Characterization of deposits on inside surfaces of LWR claddings*, Journal of Nuclear Materials 78 (1978) p. 96-111
- DANNHÄUSER G., ATRENS A., BÄRO G., *Stress corrosion cracking of Zircaloy-4 cladding tubes. Part 2.*, Journal of Nuclear Materials 126 (1984) p. 103-110
- DAS GUPTA P., ARUNACHALAM V.S., *Thermally activated deformation in dilute zirconium-oxygen alloys*, Journal of Material Science 3 (1968) p. 271-
- DAVIES J.H., ROSENBAUM H.S., ARMIJO J.S., PROEBSTLE R.A., ROWLAND T.C., THOMPSON J.R., ESCH E.L., ROMEO G., RUTKIN D.R., *Irradiation tests to characterize the PCI failure mechanism*, Proceedings of the American Nuclear Society Topical Meeting on Water Reactor Fuel Performance, St Charles (1977) p. 230-242
- DAVIES J.H., ARMIJO J.S., PROEBSTLE R.A., PARKOS G.R., SCHRECK R.L., ESCH E.L., ISAACSON J.M., NOBLE L.D., ROSENBAUM H.S., *Power ramp tests of potential PCI remedies*, Proceedings of the American Nuclear Society Topical Meeting on Light Water Reactor Fuel Performance, Portland (1979) p. 275-283
- DELETTE G., *Intégration au code METEOR1.1 de la modélisation de la corrosion sous contrainte des gaines de Zircaloy-4 détendu développée au SECC*, Rapport interne CEA Grenoble DTP/SECC n°94/106 A (1994)
- DELOBELLE P., *Synthesis of the elastoviscoplastic behavior and modelization of an austenitic stainless steel over a large temperature range under uni and biaxial loadings*, International Journal of Plasticity 9 (1993) p. 87-118

- DEREP J.L., IBRAHIM S., ROUBY R., FANTOZZI G., *Deformation behavior of Zircaloy-4 between 77 and 900K*, Acta Metallurgica 28 (1980)
- DOUGLASS D.L., *The metallurgy of Zirconium*, Atomic Energy Review (1971) supplément
- ESHELBY J.D., *The determination of the elastic field of ellipsoidal inclusion and related problems*, Proceedings of the Royal Society (London) Série A 241 (1957) p. 376-396
- ESTRIN Y., *Dislocation-density-related constitutive modeling*, chapitre 2 issu du livre *Unified constitutive laws of plastic deformation*, Éditions Academic Press (1996) p. 69-186
- FAIRMAN L., *Environmental cracking of Zircaloy 2*, International Conference on Mechanisms of Environment Sensitive Cracking of Materials, University of Surrey (1977) p. 508-519
- FANDEUR O., POMMIER S., PILVIN PH., *Propagation de fissures en élasto-visco-plasticité*, Conférence des utilisateurs ABAQUS, Paris (1999)
- FANDEUR O., PILVIN PH., Rapport à paraître (2002)
- FOREST S., *Modèles mécaniques de la déformation hétérogène des monocristaux*, Thèse de doctorat en Science et Génie des Matériaux de l'École Nationale Supérieure des Mines de Paris (1996)
- FREGONESE M., *Mécanismes de corrosion sous contrainte par l'iode dans le zirconium et le Zircaloy-4 - Transposition aux conditions d'interaction pastille-gaine dans les réacteurs à eau pressurisée*, Thèse de doctorat en Sciences et Génie des Matériaux de l'Institut National Polytechnique de Grenoble et de l'École des Mines de Saint-Étienne (1997)
- FUHRMAN N., PASUPATHI V., CORSETTI L.V., *PCI observation in a combustion engineering PWR*, Proceedings of the American Nuclear Society Topical Meeting on Water Reactor Fuel Performance, St Charles (1977) p. 262-272
- GARLICK A., WOLFENDEN P.D., *Fracture of zirconium alloys in iodine vapour*, Journal of Nuclear Materials 41 (1971) p. 274-292
- GEYER PH., *Comportement élasto-viscoplastique de tubes en Zircaloy-4 : Approche expérimentale et Modélisation micromécanique*, Thèse de doctorat en Science et Génie des Matériaux de l'École Nationale Supérieure des Mines de Paris (1999)
- GORYACHEV S.B., GRITSUK A.R., PRASOLOV P.F., SNEGIREV M.G., SHESTAK V.E., NOVIKOV V.V., BIBILASHVILI YU.K., *Iodine induced SCC of Zr alloys at constant strain rate*, Journal of Nuclear Materials 199 (1992) p. 50-60
- GRUBB W.T., MORGAN M.H. III, *A survey of the chemical environments for activity in the embrittlement of Zircaloy-2*, Zirconium in Nuclear Industry (Fourth Conference), ASTM STP 681 (1979) p. 145-154
- HADDAD R., COX B., *On the initiation of cracks in Zircaloy tubes by I<sub>2</sub> and Cs/Cd vapours*, Journal of Nuclear Materials 138 (1986) p. 81-88
- HILL R., *Continuum micro-mechanics of elastoplastic polycrystals*, Journal of the Mechanics and Physics of Solids 13 (1965) p. 89-101
- HOFMANN P., SPINO J., *Chemical interactions between simulated fission products and Zircaloy-4 at elevated temperatures, including influence on ductility and time-to-failure*, Journal of Nuclear Materials 102 (1981) p. 117-134
- HOFMANN P., SPINO J., *Determination of the critical iodine concentration for stress corrosion cracking failure of Zircaloy-4 tubing between 500 and 900°C*, Journal of Nuclear Materials 107 (1982) p. 297-310
- HOFMANN P., SPINO J., *Chemical aspects of iodine-induced stress corrosion cracking failure of Zircaloy-4 tubing above 500°C*, Journal of Nuclear Materials 114 (1983) p. 50-65



- HOFMANN P., SPINO J., *Stress corrosion cracking of Zircaloy-4 cladding at elevated temperatures and its relevance to transient LWR fuel rod behavior*, Journal of Nuclear Materials 125 (1984) p. 85-95
- HOFMANN P., SPINO J., *Conditions under which CsI can cause SCC failure of Zircaloy tubing*, Journal of Nuclear Materials 127 (1985) p. 205-220
- HWANG S.K., HAN H.T., *Anisotropic surface energy reduction of Zr by chemisorption*, Journal of Nuclear Materials 161 (1989) p. 175-181
- JACQUES P., *Contribution à l'étude de l'amorçage des fissures de corrosion sous contrainte dans le zirconium et le Zircaloy-4*, Thèse de doctorat de l'Institut National Polytechnique de Grenoble (1994)
- JONES R.L., CUBICCIOTTI D., *Final Report on EPRI/NASA Cooperative Project on the stress corrosion cracking of Zircalloys*, EPRI RP-455, NP-717 (1978)
- JONES R.L., YAGGEE F.L., STOEHR R.A., CUBICCIOTTI D., *Threshold conditions for iodine-induced stress corrosion cracking of unirradiated Zircaloy-4 tubing under internal pressurization*, Journal of Nuclear Materials 82 (1979) p. 26-38
- JONES R.L., CUBICCIOTTI D., SYRETT B.C., *Effects of test temperature, alloy composition, and heat treatment on iodine-induced stress corrosion cracking of unirradiated Zircaloy tubing*, Journal of Nuclear Materials 91 (1980) p. 277-292
- JERNKVIST L.O., *A model for predicting pellet-cladding interaction-induced fuel rod failure*, Nuclear Engineering and Design 156 (1995) p. 191-199
- KONASHI K., YATO T., KANEKO H., *Radiation effect on partial pressure of fission product iodine*, Journal of Nuclear Materials 116 (1983) p. 86-93
- KONASHI K., KAMIMURA K., YOKOUCHI Y., *Estimation of irradiation induced iodine pressure in an LWR fuel rod*, Journal of Nuclear Materials 125 (1984) p. 244-247
- KREYNS P.H., SPAHR G.L., MAC CAULEY J.E., *An analysis of iodine stress corrosion cracking of Zircaloy-4 tubing*, Journal of Nuclear Materials 61 (1976) p. 203-212
- KRÖNER E., *Zur plastischen Verformung des Vielkristalls*, Acta Metallurgica 9 (1961) p. 155-162
- KUBO T., WAKASHIMA Y., AMANO K., NAGAI M., *Effects of crystallographic orientation on plastic deformation and SCC initiation of zirconium alloys*, Journal of Nuclear Materials 132 (1985 [a]) p. 1-9
- KUBO T., WAKASHIMA Y., IMAHASHI H., NAGAI M., *Effects of intermetallic particles on the SCC initiation of zirconium alloys*, Journal of Nuclear Materials 132 (1985 [b]) p. 126-136
- LEECH N.A., GARLICK A., *The influence of environment on the formation of fluting microstructures during fracture of Zircaloy*, Journal of Nuclear Materials 125 (1984) p. 19-24
- LEFEBVRE F., LEMAIGNAN C., RÉGNARD C., ROUILLON L., MAGNIN T., FREGONESE M., *Failure mechanisms of irradiated Zr alloys during PCI loading : Activated slip systems, localized strains and Stress Corrosion Cracking*, Twelfth International Symposium on Zirconium in the Nuclear Industry, Toronto, Canada (1998)
- LEGRAND B., *Relations entre la structure électronique et la facilité de glissement dans les métaux hexagonaux compacts*, Philosophical Magazine A 52, n°1 (1985) p. 83-97
- LEMAIGNAN C., MOTTA A.T., *Zirconium alloys in nuclear applications*, Materials Science and Technology, Nuclear Materials, Part 2, chapitre 7, volume 10 B, Éditions VCH (1971) p. 1-51
- LEMAIGNAN C., *Controlled cracking of tubes*, International Journal of Pressure Vessels and Piping 15 (1984) p. 241-250
- LEMAITRE J., CHABOCHE J.L., *Mécanique des matériaux solides*, Éditions Dunod, Paris (1988) 2<sup>e</sup> édition

- LUNDE L., VIDEM K., *The influence of testing conditions and irradiation on the stress corrosion cracking susceptibility of Zircaloy*, Journal of Nuclear Materials 95 (1980) p. 210-218
- LUSTMAN B., KERZE F., *Metallurgy of Zirconium*, Éditions MacGraw-Hill, New York (1955)
- LYONS M.F., COPLIN D.H., JONES G.G., NELSON R.C., PASHOS T.J., ZIMMERMAN D.L., *High performance UO<sub>2</sub> fuel program*, General Electric Co., Quaterly Progress Reports, GEAP-3771-10, 11 et 12 (1963/1964)
- MAC DONALD R.D., HARDY D.G., HUNT C.E.L., *Unirradiated UO<sub>2</sub> in irradiated zirconium alloy cladding*, Transactions of American Nuclear Society 17 (1973) p. 216-217
- MASSIH A.R., RAJALA T., JENKVIST L.O., *Analyses of pellet-cladding mechanical interaction behavior of different ABB Atom fuel rod designs*, Nuclear Engineering and Design 156 (1995) p. 383-391
- MATTAS R.F., YAGGEE F.L., NEIMARK L.A., *Iodine stress-corrosion cracking in irradiated Zircaloy cladding*, Proceedings of the American Nuclear Society Topical Meeting on Light Water Reactor Fuel Performance, Portland (1979) p. 128-140
- MECKING H., KOCKS U.F., *Kinetics of flow and strain hardening*, Acta Metallurgica 29 (1981) p. 1865
- MILLER A.K., CHALLENGER K.D., TASOOJI A., *SCCIG: A phenomenological model for iodine stress corrosion cracking of Zircaloy*, EPRI Report NP-1798 Volume 1 (1981)
- MILLER A.K., TASOOJI A., *Stress corrosion cracking of LWR fuel: The SCC-IG model*, EPRI Report NP-1798 Volume 2 (1988)
- MURTY K.L., MAHMOOD S.T., *Effects of recrystallization and neutron irradiation on creep anisotropy of Zircaloy cladding*, Zirconium in the Nuclear Industry (9<sup>th</sup> Symposium), ASTM STP 1132 (1991) p. 198-217
- NAGAI M., SHIMADA S., NISHIMURA S., UEDA H., YAGAWA G., *Evaluation of SCC crack behavior in zirconium and Zr-2 using nonlinear fracture mechanics parameters*, Nuclear Engineering and Design 88 (1985) p. 319-326
- NAKATSUKA M., HAYASHI Y., *Effect of biaxial stresses on iodine SCC behavior of Zircaloy fuel cladding tubes*, Journal of Nuclear Materials 105 (1982 [a]) p. 159-171
- NAKATSUKA M., HAYASHI Y., *Effects of texture of zirconium alloy and multi-axial stress on iodine SCC susceptibility*, IAEA Specialists' Meeting on Water Reactor Fuel Element Performance Computer Modelling, Preston (1982 [b]), paper 3/I
- NAKATSUKA M., NAGAI M., *Reduction of plastic anisotropy of Zircaloy cladding by neutron irradiation, (I) Yield loci obtained from Knoop hardness*, Journal of Nuclear Science and Technology 24 (1987) p. 832-838
- NORRING K., HAAG Y., WIKSTRÖM C., *Propagation of stress-corrosion cracks in unirradiated Zircaloy*, Journal of Nuclear Materials 105 (1982) p. 231-236
- NORTHWOOD D.O., *Irradiation damage in Zirconium and its alloys*, Atomic Energy Review 15 (1977) p. 547-610
- PEEHS M., STEHLE H., STEINBERG E., *Out-of-pile testing of iodine stress corrosion cracking in Zircaloy tubing in relation to the pellet-cladding interaction phenomenon*, Zirconium in Nuclear Industry (Fourth Conference), ASTM STP 681 (1979) p. 229-243
- PENN W.J., LO R.K., WOOD J.C., *CANDU fuel-power ramp performance criteria*, Nuclear Technology 34 (1977) p. 249-267
- PERMEZEL P., PUIPIER P., WAECKEL N., *PCMI limits on french PWR*, Proceedings of the International Topical Meeting on Light Water Reactor Fuel Performance, West Palm Beach (1994) p. 687-693

- PILVIN PH., *Approches multiéchelles pour la prévision du comportement anélastique des métaux*, Thèse de doctorat en Mécanique des Solides et Structures de l'Université Pierre et Marie Curie - Paris VI (1990)
- PILVIN PH., in *Multiaxial Fatigue and Design*, ESIS 21, édité par A. Pineau, G. Cailletaud et T.C. Lindley, Éditions MEP, Londres (1996)
- POMMIER S., BOMPARD PH., *Bauschinger effect of alloys and plasticity-induced crack closure: a finite element analysis*, *Fatigue Fracture Engineering of Materials and Structures* 23 (1999) p. 129-139
- POMMIER S., *A study of the relationship between variable level fatigue crack growth and the cyclic constitutive behaviour of steel*, *International Journal of Fatigue* (2001) article in press
- PRIOUL C., *Le vieillissement dynamique dans les alliages de zirconium. Conséquences sur les propriétés mécaniques*, in *Le zirconium. Journées d'études « propriétés-microstructures »*, Éditeurs scientifiques G. Cailletaud et P. Lemoine, Les Éditions de Physique (1995) p. 25-34
- RÉGNARD C., LEMAIGNAN C., *Systèmes de déformation activés dans le Zircaloy-4 lors d'une sollicitation de type interaction pastille-gaine*, *Le zirconium. Journées d'études « propriétés-microstructures »*, Éditeurs scientifiques G. Cailletaud et P. Lemoine, Les Éditions de Physique (1995) p. 231-242
- RENOUARD C., *Modélisation micromécanique du comportement de tubes en Zircaloy-4 à l'état détendu*, Mémoire de stage, DEA Mécanique et Matériaux ECP-ENS Cachan-ENSAM-ENSMP-EP-UP 13 (1999)
- ROBERTS J.T.A., JONES R.L., Cubicciotti D., Miller A.K., Wachob H.F, Smith E., Yaggee F.L., *A stress corrosion cracking model for pellet-cladding interaction failures in light-water reactor fuel rods*, *Zirconium in the Nuclear Industry (Fourth Conference)*, ASTM STP 681 (1979) p. 285-305
- ROBINET P., *Étude expérimentale et modélisation du comportement viscoplastique anisotrope du Zircaloy-4 dans deux états métallurgiques*, Thèse de doctorat de l'U.F.R. des Sciences et Techniques de l'Université de Franche-Comté (1995)
- ROSENBAUM H.S., DAVIES J.H., PON J.Q., General Electric Co., Report GEAP-5100-5 (1966 [a])
- ROSENBAUM H.S., *The interaction of iodine with Zircaloy-2*, *Electrochemical Technology* 4 (1966 [b]) p. 153
- ROUILLON L., *Communications privées*, Résultats expérimentaux réalisés dans le cadre d'un programme de recherches commun CEA-EDF-Framatome sur la CSC des alliages de zirconium irradiés et non irradiés (1999 et 2000)
- ROUILLON L., FANDEUR O., LÉCOT J.-F., *Réalisation d'une préfissure en surface interne de tube par fatigue-corrosion*, Rapport interne CEA à paraître (2002)
- ROUILLON L., LEFEBVRE F., *Influence de la température d'essai sur le développement des fissures de CSC-I dans le Zircaloy-4 testé en pressurisation interne*, Note technique interne CEA Grenoble DTP/SECC n°97/062 A (1997)
- RUPA N., *Effet de l'hydrogène et des hydrures sur le comportement viscoplastique du Zircaloy-4 recristallisé*, Thèse de doctorat de l'Université de Technologie de Compiègne (2000)
- RYU W.S., KANG Y.H., LEE J.-Y., *Effects of iodine concentration on iodine-induced stress corrosion cracking of Zircaloy-4 tube*, *Journal of Nuclear Materials* 152 (1988) p. 194-203
- SACHS G., *Zur Ableitung einer Fließbedingung*, *Zeitschrift der Vereines Deutscher Ingenieure* 72 (1928) p. 734-736
- SCHÄFFLER I., *Modélisation du comportement élasto-viscoplastique anisotrope des tubes de gaine de crayons combustible entre zéro et quatre cycles de fonctionnement en réacteur à eau pressurisée*, Thèse de doctorat de l'U.F.R. des Sciences et Techniques de l'Université de Franche-Comté (1997)

- SCHUSTER I., LEMAIGNAN C., *Influence of texture on iodine-induced stress corrosion cracking of Zircaloy-4 cladding tubes*, Journal of Nuclear Materials 189 (1992) p. 157-166
- SHANN S.H., OLANDER D.R., *Stress corrosion cracking of Zircaloy by cadmium, iodine, and metal iodides*, Journal of Nuclear Materials 113 (1983) p. 234-248
- SHARKAWY S.W., ABOU-ZAHARA A.A., HAMMAD F.H., *Liquid Metal Embrittlement of Zircaloy-2 tubes by cesium and/or cadmium*, Journal of Nuclear Materials 126 (1984) p.184-189
- SHARKAWY S.W., HAMMAD F.H., ABOU-ZAHARA A.A., VIDEM K., *Influence of some factors on the susceptibility of Zircaloy-2 tubes to iodine stress corrosion cracking*, Journal of Nuclear Materials 165 (1989) p. 184-192
- SIDKY P.S., *Iodine stress corrosion cracking of Zircaloy reactor cladding: iodine chemistry (a review)*, Journal of Nuclear Materials 256 (1998) p. 1-17
- SMITH E., MILLER A.K., *Stress corrosion fracture of Zircaloy cladding in fuel rods subjected to power increases: a model for crack propagation and the failure threshold stress*, Journal of Nuclear Materials 80 (1979) p. 291-302
- SOO P., HIGGINS G.T., *The deformation of zirconium-oxygen single crystals*, Acta Metallurgica 16 (1968) p. 177-186
- STEINBERG E., PEEHS M., STEHLE H., *Development of the crack pattern during stress corrosion in Zircaloy-tubes*, Journal of Nuclear Materials 118 (1983) p. 286-293
- SYRETT B.C., CUBICCIOTTI D., JONES R.L., *Embrittlement of Zircaloy-4 by liquid cesium at 300°C*, Zirconium in the Nuclear Industry, ASTM STP 633 (1977) p. 281-294
- TABOUROT L., *Loi de comportement élastoviscoplastique du monocristal en grandes transformations*, Thèse de doctorat en Mécanique de l'Institut National Polytechnique de Grenoble (1992)
- TAYLOR G.I., *Plastic strains in metals*, Journal of the Institute of Metals 62 (1938) p. 307-324
- TENCKHOFF E., *Deformation mechanisms, texture, and anisotropy in zirconium and Zircaloy*, ASTM Special Technical Publication STP 966 (1988)
- TOMALIN D.S., ADAMSON R.B., GANGLOFF R.P., *Performance of irradiated copper and zirconium barrier-modified Zircaloy cladding under simulated pellet-cladding interaction conditions*, Zirconium in the Nuclear Industry: 4<sup>th</sup> Symposium, ASTM STP 681, (1979) p. 122-144
- UNE K., *Effects of strain rate, stress conditions and environment on iodine embrittlement of Zircaloy-2*, Proceedings of the American Nuclear Society Topical Meeting on Light Water Reactor Fuel Performance, Portland (1979) p. 148-157
- UNE K., *Threshold values characterizing iodine-induced SCC of Zircaloys*, Res Mechanica 12 (1984) p. 161-188
- VERHAEGHE B., *Revue des micromécanismes généraux de corrosion sous contrainte ; application au Zircaloy*, Note technique interne CEA Grenoble DTP/SECC n°97/051 A (1997)
- VIDEM K., LUNDE L., *Stress corrosion crack initiation and growth and formation of pellet-clad interaction defects*, Zirconium in Nuclear Industry (Fourth Conference), ASTM STP 681 (1979) p. 229-243
- VOGEL C., *Modélisation du comportement et de l'endommagement en fatigue-fluage du zirconium- $\alpha$  à 200 °C*, Thèse de doctorat en Science et Génie des Matériaux de l'École Nationale Supérieure des Mines de Paris (1996)
- WILLIFORD R.E., *The iodine-induced strain rate sensitivity of Zircaloy fuel rod cladding*, Nuclear Engineering and Design 78 (1984) p. 23-36

WILLIFORD R.E., *Chemically assisted crack nucleation in Zircaloy*, Journal of Nuclear Materials 132 (1985) p. 52-61

WOOD J.C., *Factors affecting stress corrosion cracking of Zircaloy in iodine vapour*, Journal of Nuclear Materials 45 (1972/1973) p. 105-122

WOOD J.C., SURETTE B.A., LONDON I.M., BAIRD J., *Environmentally induced fracture of Zircaloy by iodine and cesium: the effects of strain rate, localized stresses and temperature*, Journal of Nuclear Materials 57 (1975) p. 155-179

YAUNG J.Y., OKRENT D., WAZZAN A.R., *A simple computer model of pellet/cladding interaction including stress corrosion cracking*, Nuclear Technology 71 (1985) p. 644-650

ZAOUÏ A., *Changement d'échelle : motivation et méthodologie*, chapitre 1 issu du livre *Homogénéisation en mécanique et matériaux*, Tome 1, Éditions Hermès Science (2001), p. 19-39

## ***ÉTUDE EXPÉRIMENTALE ET MODÉLISATION MÉCANIQUE DE LA CORROSION SOUS CONTRAINTE DES GAINES EN ZIRCALOY-4***

La gaine des crayons combustibles des réacteurs à eau sous pression constitue la première barrière contre la dissémination des produits de fission. Il est donc primordial de garantir son intégrité au cours de son utilisation en réacteur. Lors de sollicitations importantes suite à un sévère transitoire de puissance du réacteur, la rupture de la gaine peut intervenir par un phénomène de corrosion sous contrainte (CSC), sous l'action conjuguée des sollicitations mécaniques et des produits de fission gazeux engendrés par les pastilles de combustible.

Notre travail, dont le but est d'étudier le rôle de différents paramètres sur le processus de fissuration par CSC des gaines en Zircaloy-4, comporte trois volets complémentaires :

- la modélisation des champs mécaniques locaux appliqués lors des essais en laboratoire ;
- la réalisation d'essais spécifiques de CSC visant à préciser le rôle des différents paramètres mécaniques ;
- l'observation des mécanismes d'endommagement associés à ces différentes expériences.

Le couplage entre la modélisation mécanique et les expériences permet d'obtenir des informations locales non accessibles expérimentalement et nous a conduit à développer, à l'aide d'une démarche hiérarchique, des lois de comportement précises du Zircaloy-4 détendu et adaptées aux sollicitations rencontrées lors de nos essais.

Le programme d'essais de CSC spécifiques et les observations en MEB ont démontré l'existence d'une phase d'incubation précédant la fissuration. Cette dernière, qui représente une part importante de la durée de vie mesurée lors des essais de CSC en pressurisation interne, est une étape propre à ces essais de laboratoire et doit être distinguée des mécanismes de CSC proprement dits. Elle correspond à la durée nécessaire pour mettre à nu le métal par fissuration mécanique et/ou attaque de la couche de zircone. Les premiers résultats sur éprouvettes pré-fissurées montrent que la suppression de cette phase, qui introduit un biais dans l'analyse des essais de laboratoire, est possible. De plus, nous avons aussi confirmé que l'amorçage et la propagation de fissures de CSC peuvent être très rapides lorsque le métal est mis à nu en présence d'iode.

## ***EXPERIMENTAL INVESTIGATION AND MECHANICAL MODELLING OF ZIRCALOY-4 STRESS CORROSION CRACKING***

In Pressurised Water Reactor fuel assemblies, cladding tubes constitute the first safety barriers against the fission product dissemination. It is therefore essential to ensure their integrity under all the reactor operating conditions. During an important loading, resulting from severe reactor power transients, clad failures can be induced by a Stress Corrosion Cracking phenomenon (SCC) due to the combined action of mechanical loading and gaseous fission products generated by the fuel pellets.

The aim of our work is to study the role played by different parameters on the SCC phenomenon of Zircaloy-4 claddings. It is made up of three complementary parts:

- the modelling of local mechanical fields applied during laboratory tests;
- the design of specific SCC experiments to investigate the influence of several mechanical parameters;
- the observation of the damage mechanisms occurring during these different experiments.

Coupling mechanical modelling and laboratory tests allowed to obtain some local information which cannot be obtained experimentally. A hierarchical approach was then used to develop accurate constitutive laws of the stress-relieved Zircaloy-4 alloy. The constitutive equations derived from this approach were fitted to the mechanical loading applied during the experiments.

The specific SCC tests results and SEM observations proved the existence of a time incubation period, which lasts for an important part of the lifetime measured in the SCC pressurisation tests. This incubation period is closely related to the experimental conditions of the laboratory tests. However the incubation period must be distinguished from the actual SCC mechanisms and corresponds to the time required for the metal surface to strip of its oxide layer by mechanical cracking and/or attack of zircon. First results obtained on pre-cracked samples showed that this stage, which introduces an artefact in the experimental test analysis, can be suppressed. Moreover, we have borne out that initiation and propagation of SCC cracks can be very fast when metal is laid bare and when iodine is present.